

10/532506

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際公開

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2004年5月6日 (06.05.2004)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2004/037504 A1(51) 国際特許分類<sup>7</sup>: B29B 7/00, C08L 91/06

京都 中央区 日本橋茅場町一丁目14番10号 Tokyo (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2003/013485

(22) 国際出願日: 2003年10月22日 (22.10.2003)

(72) 発明者; および

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:  
特願 2002-307983

2002年10月23日 (23.10.2002) JP

特願2003-346785 2003年10月6日 (06.10.2003) JP

特願2003-346888 2003年10月6日 (06.10.2003) JP

特願2003-351263 2003年10月9日 (09.10.2003) JP

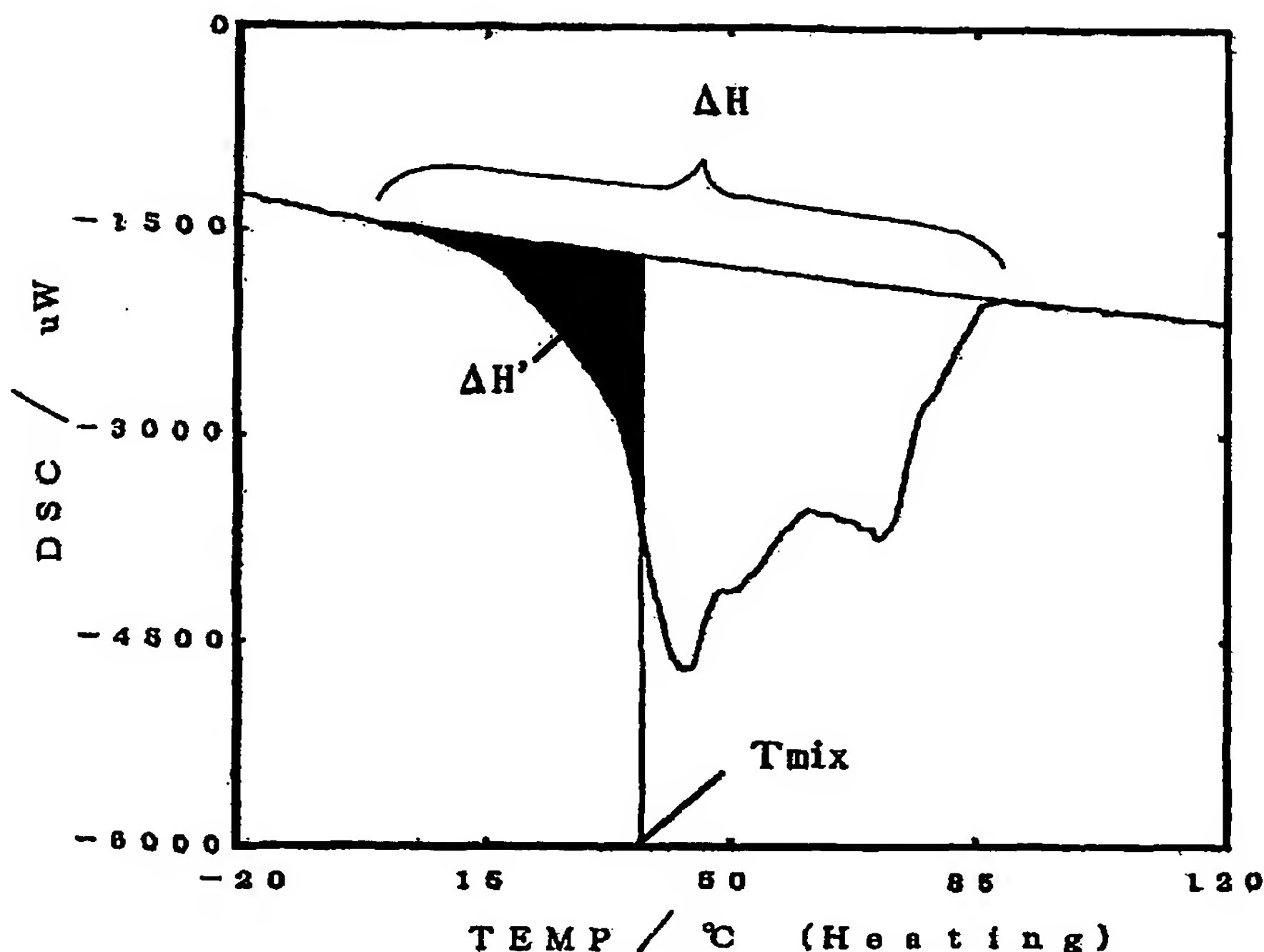
(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 花王株式会社 (KAO CORPORATION) [JP/JP]; 〒103-8210 東

(75) 発明者/出願人 (米国についてののみ): 小田嶋 信吾 (ODAJIMA, Shingo) [JP/JP]; 〒321-3497 栃木県 芳賀郡 市貝町赤羽2606 花王株式会社研究所内 Tochigi (JP). 一色 信之 (ISSHIKI, Nobuyuki) [JP/JP]; 〒640-8404 和歌山県 和歌山市 湊1334 花王株式会社研究所内 Wakayama (JP). 大賀 英俊 (OGA, Hidetoshi) [JP/JP]; 〒321-3497 栃木県 芳賀郡 市貝町赤羽2606 花王株式会社研究所内 Tochigi (JP). 大塚 仁史 (OTSUKA, Hitoshi) [JP/JP]; 〒321-3497 栃木県 芳賀郡 市貝町赤羽2606 花王株式会社研究所内 Tochigi (JP). 後藤 実 (GOTO, Minoru) [JP/JP]; 〒321-3497 栃木県 芳賀郡 市貝町赤羽2606 花王株式会社研究所内 Tochigi (JP). 川俣 章 (KAWAMATA, Akira) [JP/JP]; 〒640-8404 和歌山県 和歌山市 湊1334 花王株式会社研究所内 Wakayama (JP).

[続葉有]

(54) Title: WAX COMPOSITION AND METHOD FOR PRODUCTION THEREOF

(54) 発明の名称: ワックス組成物及びその製造方法



(57) Abstract: A method for producing a composition containing a wax as its primary component, characterized in that it comprises admixing said wax and a material to be mixed with said wax through applying an external force at a temperature at which the melting of said wax is not completed.

[続葉有]

WO 2004/037504 A1



(74) 代理人: 羽鳥 修, 外(HATORI, Osamu et al.); 〒107-0052 東京都 港区 赤坂一丁目 8 番 6 号 赤坂 H K N ビル 6 階 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

一 国際調査報告書

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(57) 要約: ワックスを主体とする組成物の製造方法であって、該ワックスの融解完了温度未満の温度で、該ワックスと該ワックスと混合される被混合物に外力を加えて混合することを特徴とする。

## 明 細 書

## ワックス組成物及びその製造方法

## 技術分野

本発明は、ワックスを主体とする組成物およびその製造方法に関する。

- 5     また、本発明は、防湿性に優れ、多層フィルムやコート層の形成が容易な生分解性ワックス組成物に関する。

さらに、本発明は、防湿性に優れ、溶融成形その他の加工が容易なワックス組成物に関する。

## 背景技術

- 10     防湿コーティング剤などのワックスを主体とする組成物を得る手段としては、従来は、主として組成物の成分を溶融状態で機械的に混合する方法（例えば、特開平 7 - 2 7 8 5 1 0 号公報参照。）、ワックスエマルジョンを用いて混合する方法（例えば、特開昭 5 9 - 6 6 5 9 8 号公報。）が用いられてきた。また、溶剤を用いて混合した溶液を塗布し、
- 15     溶剤を乾燥させて組成物の膜を形成する方法が用いられてきた（例えば、特開 2 0 0 2 - 2 6 6 2 8 4 号公報。）しかし上記の方法では、以下の問題があった。

- 溶融状態で機械的に混合する方法では、溶融状態のワックスの粘度が低いために、ワックスと固体状または高粘度の物質との混合を行う場合
- 20     は、これら被混合物へ十分な剪断力が加わらないために、各成分の均一な分散状態を得るのが困難であった。

ワックスエマルジョンを用いる方法では、エマルジョンを構成する成分の粒子サイズ以下で該成分を分散させることが不可能であるため、均一な分散状態の組成物を得ることが困難であった。

- 25     溶剤を用いる方法では、中間製品や最終製品において残留溶剤による

臭いや安全性での問題のほか、多量の溶剤を使用するために自然環境、労働環境などに悪影響を及ぼす問題を有している。近年、食品包装材料におけるラミネート接着剤や印刷インキ等に由来する残留溶剤による人体への影響が懸念されており、改善が求められている。そのためには、  
5 製造工程において溶剤を用いない方法が根本的な解決策となる。

また、高い融点を有するワックスは溶剤に溶解しにくいいため、均一な組成物が得られにくい。被混合物が溶剤に不溶な物質（例えば無機粒子など）の場合には、被混合物へ十分な力が加わらないために十分な分散が難しく、ワックスと被混合物との間に比重差がある場合には被混合物  
10 が沈降して濃度ムラが生じてしまう。

本発明は、上述の問題に鑑みてなされたものであり、その第1の目的は、残留溶剤がなく構成成分の分散が均一なワックスを主体とするワックス組成物と、そのワックス組成物を低コストで製造することができるワックス組成物の製造方法を提供することにある。

15 一方、ワックスは、防湿剤やホットメルト接着剤の一成分として広く使用されている。近年の環境意識の高まりから、ワックスを用いた素材に生分解性が要求されるようになりつつある。ワックスの中には生分解性を有するものが種々ある。ワックスはその溶融粘度が極端に低いため、通常は樹脂等と混合されて用いられる。

20 例えば熱可塑性樹脂と粘着付与剤とを主成分とする生分解性のホットメルト接着剤組成物が知られている（特開平5-339557号公報参照）。この組成物においては、熱可塑性樹脂及び粘着付与剤の少なくとも一方がポリ乳酸又は乳酸共重合体からなり、50重量%以下のワックスを含む。また、生ロジン、天然ゴム及びワックスからなる生分解性の  
25 ホットメルト接着剤組成物も知られている（特開平7-278510号公報参照）。これらの組成物は、十分な防湿性を有するものではないの

で、該組成物を熔融成形して得られたフィルムを、例えば防湿性が必要とされる包装材や容器のライナーとして用いることはできない。またこれらの組成物は、ホットメルト粘着剤として用いられるという性質上ワックス単体に比べるとその熔融粘度が高くなっているが、押出機を用いたTダイフィルムやインフレーションフィルムの製造などの熔融成形を行うほどの高い熔融粘度は有さない。

熔融成形可能な生分解性の組成物として、コーングルテンミール及び天然ゴムを主成分とするものが知られている（特開2001-288295号公報）。この組成物は耐水性や湿潤強度が高いとされている。しかし、特開平5-339557号公報及び特開平7-278510号公報に開示されたホットメルト接着剤組成物と同様に、十分な防湿性を有するものではない。

天然ゴムとカルナバロウやキャンデリラワックスとを溶媒を用いて混合してなる塗液も知られている（特開2002-266284号公報参照）。この塗液は、防湿性を有するコートを紙製の容器に形成するために用いられる。しかし、ここで開示された塗液は多量の溶媒を含有して粘度も低いため、押出機を用いた成形を行うことは不可能である。

このように、熔融成形が可能で且つ防湿性が十分に高い生分解性の組成物や、接着性が高く且つ且つ防湿性が十分に高い生分解性の組成物は未だ得られていない。

従って本発明は、前述した従来の生分解性ワックス組成物が有する種々の不都合を解消し得る生分解性ワックス組成物を提供することを第2の目的とする。

一方、防湿性能を有する包装材や容器等を形成する場合には、低分子



ワックスを含むワックス組成物を、紙や樹脂フィルムの等の基材に塗布したり、熱可塑性樹脂と共押出成形して多層の積層体を形成することが行われている。

これらの加工は、低分子ワックスの融点以上で行われることが多い。

- ； しかし、低分子ワックスは、粘度が低いため、これを含有する組成物は、加工性が悪いという問題がある。加工時の粘度は、ワックス組成物に多量の高分子物質を配合して増加させることができるが、その場合には、防湿性能が低下するという問題がある。

- 0 更に、ワックス組成物を用いて製造した防湿容器等の製品においては、内容物の高温での充填、高温での殺菌や調理の際等に、ワックス層とそれに隣接する層との間に剥離が生じたり、ワックス層が流動してワックス組成物層の厚みの均一性が失われたりして、防湿性能等が低下する場合がある。

- 5 特開平 8 - 2 0 9 0 0 0 号公報には、紙容器に耐水性等を付与するための紙容器用ワックス組成物として、融点 4 5 ~ 8 5 ℃の石油系ワックスを主成分とするものが記載されている。しかし、この組成物は、熔融状態の粘度が低いため、例えば T ダイ法やインフレーション法による熔融押出成形等が困難であり、また、得られた紙容器は、高温での熱処理をした場合には、耐水性能が維持されない。

- 20 また、特開 2 0 0 3 - 5 4 3 1 号公報には、融点の異なる 2 種類のワックスを含有する電子写真用トナーが開示されているが、樹脂に比べてワックスの比率が極端に低く、該トナーを防湿層の形成に用いることはできない。

#### 発明の開示

- 25 本発明者らは、ワックスを主体とする組成物を、ワックスの融解完了温度未満の温度で混合することによって上記第 1 の目的を達成し得るこ

とを知見した。

本発明は、上記知見に基づきなされたものであり、ワックスを主体とする組成物の製造方法であって、該ワックスの融解完了温度未満の温度で、該ワックスと該ワックスと混合される被混合物に外力を加えて混合  
5 することを特徴とするワックス組成物の製造方法を提供するものである。

また、本発明は、前記本発明のワックス組成物の製造方法で製造された、ワックスを主体とし生分解性の非晶性の高分子を含有する生分解性ワックス組成物を提供するものである。

10 また、本発明は、ワックスを主体とし、生分解性の高分子を含有し、残留溶剤濃度が 3 ppm以下である生分解性ワックス組成物を提供するものである。

本発明は、ワックスを主体とし、40℃、90%RHにおける透湿度が  $3 \text{ g} \cdot \text{mm} / \text{m}^2 \cdot 24 \text{ h r}$  以下で、125℃、1.2 kgf 荷重下で  
15 のメルトフローレートが  $0.1 \sim 1000 \text{ g} / 10 \text{ min}$  である生分解性ワックス組成物を提供することにより、前記第2の目的を達成したものである。

また本発明は、上記本発明の生分解性ワックス組成物からなる防湿層の少なくとも一面に生分解性樹脂層が積層されてなる生分解性フィルム  
20 を提供するものである。

また本発明は、紙材料の表面に、上記本発明の生分解性ワックス組成物が設けられ、その上に生分解性樹脂層が設けられてなる生分解性積層体を提供するものである。

また本発明は、生分解性の容器本体の全部または一部が、前記本発明の生分解性フィルムで被覆されてなり、該生分解性フィルムは前記生分解性樹脂層が容器本体と反対側を向くように被覆されている生分解性容器を提供するものである。

5      本発明は、DSCによる熱量測定において100℃以上に吸熱ピークを有する高温融解ワックス成分及び40℃以上100℃未満に吸熱ピークを有する低温融解ワックス成分、並びに高分子物質を含有する、前記両ワックス成分を主体とするワックス組成物を提供することにより、前記第3の目的を達成したものである。

10      本発明は、上記本発明のワックス組成物からなる防湿層の少なくとも一面に樹脂層が積層されてなる防湿性フィルムを提供するものである。

本発明は、上記本発明のワックス組成物を用いて、該ワックス組成物からなる防湿層を有する防湿性物品を製造する方法であって、前記ワックス組成物に100℃以上の加熱を伴う加工を施す工程を具備し、該工  
15 程における加熱温度を、全ワックス成分についてのDSCによる熱量測定において該加熱温度より高温側の吸熱量と該加熱温度より低温側の吸熱量との比（前者／後者）が0.1～5.0となる温度とする防湿性物品の製造方法を提供するものである。

#### 図面の簡単な説明

20      図1は、DSC測定結果における $\Delta H$ 、 $\Delta H'$ 及び混合温度の関係を示す図である。

図2は、DSC測定結果から融解完了温度、融解ピーク温度を求める手法の説明図である。

図3は、実施例2-1で用いたワックスのDSCによる熱量測定結果  
25      を示す図である。



図 4 は、本発明のワックス組成物の一実施形態についての D S C 曲線を示す図である。

#### 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明を、その好ましい実施形態に基づいて説明する。

5      まず、第 1 実施形態のワックス組成物について説明する。

第 1 実施形態のワックス組成物は、ワックスを主体としたものであり、被混合物として熱可塑性樹脂やエラストマー等の高分子物質、有機および無機の粉体などを選択することができる。具体的には、ワックスの溶解粘度に比べて高い粘度を有する粘稠な高分子物質を混合する場合や、  
10      粉体などの固体状物質をワックスに分散させる場合に、本発明の製造方法が特に効果を発揮する。なぜなら、後述する本発明の製造方法を適用することで、未熔融状態の高粘度のワックスを介して、被混合物に対して高い剪断力を加えることができるからである。

また、前記ワックス組成物に生分解性が要求される場合には、該組成物の構成成分として生分解度（J I S    K 6 9 5 0 に定められた）が 5  
15      0 % 以上のものを用いることが好ましく、6 0 % 以上のものを用いることがより好ましい。

本実施形態のワックス組成物は、ワックスを主体とするものであり、該ワックスの組成比が好ましくは 4 0 w t % 以上の場合に高い効果を得ることができる。より好ましくは 5 0 w t % 以上、さらに好ましくは 6 0  
20      w t % 以上の、ワックス相がマトリックスとなる系でより高い効果を得ることができる。特に、被混合物が比重の高い無機粉体などの場合には、ワックスの体積分率が好ましくは 5 0 % 以上、より好ましくは 6 0 % 以上の、ワックス相がマトリックスとなる系でより高い効果を得ることができる。  
25      できる。

前記ワックスには、植物系ワックス、動物系ワックス、鉱物系ワックス、石油系ワックス、合成ワックス等を用いることができる（例えば、府瀬川健蔵、「ワックスの性質と応用」、幸書房、1993年、改訂2版第1刷、2頁目、表1.0.1に記載されたワックス（以下、文献1記載のワックスという。）が使用可能である。）。

該植物系ワックスとしては、ライスワックス、カルナバワックス、木ろう、キャンデリラワックス等が、該動物系ワックスとしては、みつろう、ラノリン、鯨ろう等が、該石油系ワックスとしては、マイクロクリスタリンワックス、パラフィンワックス等が、該合成ワックスとしては、ポリエチレンワックス、フィッシュートロブシュワックス等が、該鉱物ワックスとしては、モンタンワックス、オゾケライト、セレシン等が挙げられる。これらのワックスはいずれも好ましく使用することができる。混合時の剪断発熱によるワックスの粘度低下を抑制し、被混合物に十分な剪断力を加えるためには、低融点成分が少ないワックスを用いることが好ましい。同様の理由で、非晶成分が少ないワックスを用いることが好ましい。ただし、ワックス組成物の用途によっては、生活温度範囲である程度の粘着性を必要とする場合があるので、混合に大きな影響を与えない範囲で、適度な量の低融点成分や非晶成分を含有することが好ましい場合もある。かかる観点から、J I S K 2 2 3 5 - 5 . 3 . 2 に記載の方法で測定された融点が40℃以上であるものが好ましく、60℃以上であるものがより好ましい。

前記高分子物質は、前記ワックスの固体状態もしくは熔融状態の物性改質や機能付加等を目的として用いることができる。例えば、固体状態の力学強度（破断強度、衝撃強度、曲げ強度、柔軟性付与等）、他の材料への接着性向上や、熔融状態での熔融粘度向上等である。前記高分子物質は、前記ワックスの重量に対して5～35%、特に15～30%含まれていることが好ましい。該高分子物質が斯かる範囲で含まれている

と、前記ワックスの物性改質や機能付加等を効果的行うことができる。

前記高分子物質としては、ポリオレフィン系樹脂、ポリエステル系樹脂、ポリアミド系樹脂等の結晶性高分子、未架橋のゴムやポリエステル系、ポリアミド系、ポリスチレン系、ポリ（メタ）アクリル系の共重合体等の非晶性高分子若しくは低結晶性高分子等が挙げられる。ただし、  
5 混合する高分子物質を微細に分散するためには、結晶性高分子の場合にはワックスの融解終了温度以下である所望の混合温度において溶融するものが好ましく、非晶性高分子の場合にはワックスの融解終了温度以下である所望の混合温度以下にガラス転移温度を有するものが好ましい。

10 具体的には、前記結晶性高分子としては、エチレン- $\alpha$ オレフィン共重合体、エチレン-酢酸ビニル共重合体、エチレン-メタクリル酸共重合体、ポリカプロラクトン、ポリブチレンテレフタレートアジペート、ポリブチレンサクシネートアジペート等の融点の低い高分子が挙げられる。また、前記非晶性高分子としては、イソプレングム、天然ゴム、  
15 り d, 1-乳酸等が挙げられる。これらの結晶性高分子及び非結晶性高分子は、単独で若しくは複数種を選択して用いることが出来る。

前記ワックス組成物に生分解性が要求される場合には、物性改質に高い効果を有する生分解性の高分子として、上記の中でも特に天然ゴム又は合成イソプレングムが好ましく用いられる。臭いや色、含まれるタンパクによるアレルギーなどの点を考慮すると、天然ゴムよりも合成イソ  
20 プレングムが好ましい。ワックスと、天然ゴム又は合成イソプレングムとの混合において、後述する本発明の製造方法では、従来得られなかった物性改質効果を有する組成物を、溶剤等を用いることなしに得ることができる。ワックスと天然ゴム又は合成イソプレングムとを後述する本  
25 発明の製造方法により混合することで、天然ゴム又は合成イソプレングムをワックス中に極めて均一に混合させることが可能となり、ワックス

の熔融粘度を非常に高くしたり、ワックス融点以下でのワックスの脆さを大きく改善するなどの効果が得られる。

前記高分子物質は、単独で使用することもでき、二種以上を併用することもできる。

- 5 前記有機粉体としては、コーンスターチ、デンプン、各種高分子粉体などの有機粉体が挙げられる。また、前記無機粉体としては、酸化チタン、タルク、雲母、スメクタイト、シリカ等の無機粉体が挙げられる。

本実施形態のワックス組成物は溶剤を含まないので、残留溶剤を実質的に含まないものである。従って、残留溶剤の量は、検出可能な 3 p p  
10 m以下の濃度である。そのため、本実施形態のワックス組成物を用いた中間品や製品の製造工程においても、労働環境を汚染することがなく極めて安全性が高い。また、本実施形態のワックス組成物は、食品その他の包装材料をはじめとする多くの分野において安全に利用することができる。

- 15 本実施形態のワックス組成物には、その効果や製造工程に影響を与えない範囲で、酸化防止剤、着色剤、分散助剤、その他必要に応じて適宜添加剤等を含ませることもできる。

次に、本発明のワックス組成物の製造方法を、その好ましい実施形態として、上述の第1実施形態のワックス組成物の製造方法に基づいて説  
20 明する。

本実施形態のワックス組成物の製造方法は、前記所定の配合で前記ワックスと前記被混合物とを該ワックスの融解完了温度未満の温度、好ましくはDSC (Differential Scanning Calorimeter: 示差走査熱量計) による熱量測定により得た融解曲線から求めた熔融ピーク温度以下の温  
25 度で各種の混練機の機械力によって混合して組成物を得る。熔融ピーク

が複数ある場合は、融解熱量の最も大きなピークのピーク温度以下で混合することが好ましい。該ワックスの融点以上の温度で該ワックスと該被混合物とを混合すると、ワックスの融解によりワックスの粘度が急激に低下するため、被混合物に十分な剪断力が加わらないために、混合が

5 不十分となり均一な組成物を得ることが困難となる。ワックスの融解完了温度未満の温度で混合することで、未熔融状態のワックスの結晶が残っているため、ワックスを見かけ上高粘度の流動体として扱うことができるので、一般的に行われているプラスチック材料のコンパウンドと同様の方法により、ワックスと被混合物の混合を行うことができる。

10 また、より好ましい混合温度の選定方法として以下の方法がある。DSCによる熱量測定により得た融解曲線から、図1.に示すように、融解ワックス成分の全吸熱量を $\Delta H$ とした場合に、低温側からの吸熱量（融解開始温度から混合温度 $T_{mix}$ までの吸熱量）の積算値 $\Delta H'$ が好ましくは $\Delta H$ の70%以下となる温度範囲、より好ましくは50%以下となる

15 温度範囲、さらに好ましくは30%以下となる温度範囲で、良好な混合が可能となる。ワックスの融解開始温度よりも低い温度で混合を行うことに支障は無いが、結晶性の高い硬いワックスなどにおいて、混合温度で粘りを有することが好ましい場合には、下限温度として、前記積算値 $\Delta H'$ が好ましくは3%以上、より好ましくは5%以上となるよう選択

20 する。

最適な混合温度は、被混合物の物性に合わせて、上記の混合温度の中から適宜選択することができる。例えば、被混合物が非晶性高分子である場合は、非晶性高分子のガラス転移温度以上で混合することが好ましい。被混合物が結晶性高分子である場合は、結晶性高分子の融点以上の

25 温度であることが好ましい。被混合物が前記無機又は前記有機粉体である場合は、粉体の均一分散を行いやすいよう、ワックスの融解完了温度よりも十分に低い温度（例えば、ワックスの融解開始温度よりも低い温



度)で混合することが好ましい。ワックスが硬過ぎて、分散状態が悪化したり、混合装置に過度の負荷がかかることを回避するためにはワックスのガラス転移温度以上で混合することが好ましい。また、ワックスや被混合物の温度依存性を良く考慮し、上記の好ましい範囲の中でも、両者の物性が混合に最適な状態になるように混合温度を調整することが好ましい。

本実施形態におけるワックスの融解完了温度、融解ピーク温度、 $\Delta H$ と $\Delta H'$ の比は、例えば、以下の方法で求めることができる。

測定機：セイコー電子工業（株）の型式DSC220

10 試料容器：品番PN/50-020（アルミ製オープン型試料容器、容量15 $\mu$ l）および品番PN/50-021（アルミ製オープン型試料容器クリンプ用カバー）

試料重量：約10mg

昇温速度、降温速度：5 $^{\circ}$ C/min

15 測定温度範囲：用いるワックスに応じて、最適な範囲を選択する。融解完了温度および融解ピーク温度は、一度融解させた後に5 $^{\circ}$ C/minの速度で結晶化させた後、再度5 $^{\circ}$ C/minの速度で昇温させたときのデータを使用して求める。

具体例を挙げると、[第1昇温過程]30 $^{\circ}$ Cから130 $^{\circ}$ Cまで、[降温過程]130 $^{\circ}$ C（5分間保持）から-30 $^{\circ}$ Cまで、[第2昇温過程]30 $^{\circ}$ Cから130 $^{\circ}$ Cまでと連続して測定を行い、第2昇温過程のデータを使用する。

融解完了温度：図2に示すように、融解ピークの高温側のベースラインの接線と、ピークの高温側傾斜ラインの1/5ピーク高さに位置する点の接線とが交差する点の温度を融解完了温度とする。複数のピークが存在する場合は、最も高温側に位置するピークを選択して、融解完了温度を求める。

主ピーク温度：融解曲線のピークの温度を上記データから求める。複数のピークを持つ場合は、融解熱量の最も大きなピークを選択し、それを融解ピーク温度とする。

5 前記ワックスと前記被混合物との混合は、ワックスの結晶が残っている状態での混合になるため、粘度の高い材料の混合に用いられる混合装置を用いることが好ましく、また均一な混合状態を得るためにはワックス融解完了温度以下の最適な温度に制御する必要があるので、温度制御  
10 できる混合容器が好ましく、さらにはローターやスクリュウなどの可動部も冷却できる仕様が好ましい。かかる観点から、加圧ニーダー、オープンニーダー、ロール混練機を用いて混合することが好ましい。

本実施形態の製造方法を用いると、前記有機粉体や無機粉体もワックス中に均一に分散させることができる。特に、疎水性の高いワックス中に、親水性の比較的高い粉体を分散させる場合、ワックスの融点以上では粉体が凝集してしまい、粉体の細かな分散が不可能であったが、本実  
15 施形態の製造方法を用いることで粉体の高い分散性を得ることが可能となった。

上記の方法で得た組成物は、混合の工程中に気泡を含むことがあるので、脱泡を行うこともある。脱泡には一般的な方法を用いることができる。例えば、減圧下にある恒温槽中でワックスの融解温度以上に保持する  
20 方法、減圧手段を持つニーダーなどの混合装置を用いて減圧下でワックスの融解温度以上で混合する方法などが用いられる。

また、被混合物として天然ゴムやイソプレングムなどを用いる場合は、ワックスと被混合物との分散状態をより均一にするために、得られた前記組成物を前記ワックスの融解温度以上に加熱することが好ましい。

本実施形態のワックス組成物の製造方法によれば、前記第1実施形態のワックス組成物を短時間で収率よく製造することができ、被混合物をワックス中に均一に分散することができる。特に、ワックスと天然ゴムもしくはイソプレンゴムとの混合を行った場合には、ワックスが未溶融  
5 の状態であっても被混合物の極めて均一な分散が可能となる。

次に、第2実施形態のワックス組成物（生分解性ワックス組成物）を、その好ましい実施形態に基づき説明する。

本実施形態のワックス組成物はワックスを主成分とするので十分な防湿性が発現される。また生分解性を確保することができる。その結果、  
10 その結果、本実施形態のワックス組成物は生分解性であって且つその透湿度が、 $40^{\circ}\text{C}$ 、 $90\% \text{RH}$ の環境下において  $3 \text{ g} \cdot \text{mm} / \text{m}^2 \cdot 24 \text{ hr}$  以下、好ましくは  $2 \text{ g} \cdot \text{mm} / \text{m}^2 \cdot 24 \text{ hr}$  以下、より好ましくは  $1 \text{ g} \cdot \text{mm} / \text{m}^2 \cdot 24 \text{ hr}$  以下となる。ワックス組成物の透湿度の下限值に制限はなく低ければ低いほど好ましい。

15 本実施形態のワックス組成物の透湿度は、該ワックス組成物から所定厚みのフィルムを成形し、そのフィルムについてカップ法（JIS Z 0208 条件B）によって測定した透湿度を厚み  $1 \text{ mm}$  のフィルムに換算した値である。この透湿度の換算値は、透湿度がフィルム厚みに反比例すると仮定し、カップ法で測定した透湿度にフィルム厚みを乗じ  
20 ることにより算出される。但し、ワックス組成物だけからなるフィルムを作製し、その透湿度を上記の方法で測定することが困難である場合が多いため、その場合には透湿度が既知の生分解性樹脂フィルムと、ワックス組成物との積層フィルムを作製し、ワックス組成物の透湿度を求める。例えば、生分解性樹脂層（A）／ワックス組成物層（B）／生分解  
25 性樹脂層（C）からなる3層フィルムを作製し、上記の方法で3層フィルム全体の透湿度を測定し、その透湿度を  $d$  とする。別途、生分解性樹脂層（A）および生分解性樹脂層（C）の透湿度を同様に測定し、それ

それぞれの透湿度を  $a$  および  $c$  とする。ワックス組成物層 (B) の透湿度を  $b$  とすると、下記の関係が成り立つ。ここで、 $a$ 、 $b$ 、 $c$ 、 $d$  は、実際の厚みにおける透湿度であり、1 mm の厚みに換算した透湿度ではない。

$$1/d = 1/a + 1/b + 1/c$$

- 5      この式から、未知数であるワックス組成物層 (B) の透湿度  $b$  を求めることができる。

本実施形態のワックス組成物がワックスを主成分とすることは前述の通りであるが、前記の透湿度を容易に達成するためには、ワックス組成物はワックスを 65 ～ 95 重量%、特に 70 ～ 85 重量% 含有することが好ましい。

本実施形態のワックス組成物の生分解性を確保する観点から、ワックスとしてその生分解度 (JIS K 6950 又は JIS K 6953) が 30% 以上であるものを用いることが好ましく、50% 以上であるものを用いることが更に好ましく、60% 以上のものを用いることが一層好ましい。

またワックスは、ワックス組成物や該ワックス組成物から熔融成形した成形体の保存安定性の点から、その融点が 40℃ 以上であることが好ましく、60℃ 以上であることが一層好ましい。ワックスの融点は、JIS K 2235-5.3 に従って測定される。

- 20      以上の各種特性を有するワックスとして本実施形態において好ましく用いられるものには植物系ワックス、動物系ワックス、石油系ワックス等がある。例えば、前記文献 1 記載のワックスが使用可能である。具体的には植物系ワックスとしては、ライスワックス、カルナバワックス、キャンドリラワックス等が挙げられる。動物系ワックスとしては、蜜ろう、ラノリン、鯨ろう等が挙げられる。石油系ワックスとしては、マイ
- 25

クロクリスタリンワックス、パラフィンワックス等が挙げられ、これらの中でもマイクロクリスタリンワックスが好ましい。また、合成ワックスであっても、生分解性を有するものであれば本発明において用いることができる。

- 5      また、ワックス組成物を他の素材に積層する際に良好な接着性を得るために、及びワックス組成物の可撓性を得るために、該ワックス組成物に含まれるワックスは、DSCによる熱量測定において、50℃を境として低温側での吸熱量 $\Delta H_1$ が、全吸熱量 $\Delta H_2$ に対して10%以上であることが好ましく、20%以上であることが更に好ましく、30%以上であることが一層好ましい。このことは、ワックス組成物に、比較的
- 10      低温で熔融するワックスが含まれていることを意味する。 $\Delta H_1 / \Delta H_2$ の値が前記の値以上であることによって、ワックス組成物は、生分解性樹脂や紙材料等への接着力が高くなり、また曲げなどの変形に起因する割れや亀裂の発生などの欠陥が生じにくくなる。ワックス組成物の耐
- 15      熱性を十分に得るためには、該ワックス組成物に含まれるワックスは、50℃を境として低温側での吸熱量 $\Delta H_1$ が、全吸熱量 $\Delta H_2$ に対して90%以下であることが好ましく、80%以下であることが更に好ましく、70%以下であることが一層好ましい。それにより、耐熱性の低下が抑制される。DSCによる熱量測定は、前述の第1実施形態における
- 20      と同様の方法で行う。

- 本実施形態のワックス組成物は、125℃、1.2kgf荷重下でのメルトフローレート（以下MFRともいう）が0.1～1000g/10minであることが好ましく、より好ましくは0.5～100g/10min、さらに好ましくは1～30g/10minである。つまり本
- 25      発明のワックス組成物は、押出機を用いた熔融成形に適した熔融流動特性を有している。従って本発明のワックス組成物を用いれば、Tダイ法やインフレーション法によるフィルム成形を容易に行うことができる。



生分解性のワックスは一般に融点が100℃未満であることから、本実施形態のワックス組成物を溶融させると粘度が低下して、溶融成形を行いにくい場合がある。そのようなワックス組成物の溶融粘度を上げるためには、全ワックス成分以外に高分子物質を組成物中に配合することが考えられるが、その場合には得られるワックス組成物の防湿性が低下しやすい。そこで本発明者らが鋭意検討したところ、高分子物質としてポリイソプレン（合成）又は天然ゴムを組成物中に配合すると、得られるワックス組成物の防湿性を低下させることなく、溶融粘度を上げられることが判明した。またポリイソプレンや天然ゴムは一般の土壤に生息する菌によって分解されるので、これらの成分を本発明のワックス組成物に配合してもその生分解性が損なわれることはない。つまりポリイソプレンや天然ゴムは生分解性高分子物質である。またポリイソプレン又は天然ゴムを配合することで、ワックス組成物を成形して得られる成形物に耐熱性や強度、可撓性を付与できるという効果もある。

アレルギーの発生防止、架橋したゲルによるワックス組成物の不均一性の防止、分子量の変動によるワックス組成物の粘度などの品質のバラツキ防止、臭いの発生や着色防止の観点から、ワックス組成物の具体的な用途にもよるが、天然ゴムよりもポリイソプレンを用いることがより好ましい。

ワックス組成物の防湿性を低下させることなく、溶融成形に適した溶融流動特性を得るためには、ワックス組成物中へのポリイソプレンや天然ゴムの配合量は5～35重量%、特に15～30重量%であることが好ましい。

ワックス組成物の溶融流動特性を溶融成形に適したものとするには、ポリイソプレンや天然ゴムなどの生分解性高分子物質の分子量を適切にコントロールすることが有利であることが本発明者らの検討によって判

明した。その重量平均分子量を200,000以上、特に400,000以上、とりわけ700,000以上にコントロールすると、ワックス組成物の熔融流動特性を熔融成形に適したものとすることができる。重量平均分子量の上限は、熔融粘度を高める点で特に制約はないが、ワックス組成物の製造のしやすさを考慮すると4,000,000以下、特に2,000,000以下が好ましい。重量平均分子量はGPC測定によって求められる。具体的には、ワックス組成物をクロロホルムに溶解させた後、未溶解のワックスを濾過により除去した溶液を測定対象としてGPC測定する。測定結果と分子量既知のポリスチレン標準サンプルの測定で得た校正曲線とからポリイソプレンや天然ゴム重量平均分子量を求める。

ポリイソプレンや天然ゴムの分子量をコントロールするには、例えば本発明のワックス組成物の製造過程において、ワックスとポリイソプレン又は天然ゴムとを混練してワックス組成物を製造するときの混練時間、剪断力、温度を調整して、ポリイソプレンや天然ゴムに機械的な剪断力を加え分子鎖を切断したり、混練時に発生する熱によって酸化反応を生じさせて分子鎖を切断する方法がある。一般に、混練時間が長くなるとポリイソプレンや天然ゴムの分子量が低下していき、ワックス組成物のMFRは上昇する傾向にある。また、酸素存在下で加熱した場合には、酸化反応により分子量が著しく低下する場合がある。そこで、熔融粘度を高く維持するためには、(1)混練時に被混練物に過度の剪断力を与えないようにする、あるいは被混物を加熱し過ぎないようにする、(2)加熱時には不活性ガス雰囲気下で行う、(3)適切な酸化防止剤を使用することが好ましい。

ポリイソプレンや天然ゴムの分子量をコントロールする別法として、ポリイソプレンや天然ゴムを適度に架橋させる方法がある。この方法は、前述した混練においてポリイソプレンや天然ゴムの分子量が過度に低下

した場合にそれを高める方法として特に有用である。架橋剤の種類に特に制限はない。例えば過酸化ラウロイルを、架橋前のポリイソプレンや天然ゴムに対し0.1～2重量%程度加えることで、ポリイソプレンや天然ゴムの分子量を前述した範囲内にすることができる。ポリイソプレンや天然ゴムを架橋させるには、例えば本実施形態のワックス組成物を押出機を用いて熔融成形するとき、押出機に架橋剤を添加することが簡便である。勿論、予め架橋されたポリイソプレンや天然ゴムとワックスとを混練してワックス組成物を得てもよい。

本実施形態のワックス組成物は、これをペレット形状に加工することで、一般的な押出機に供給して熔融成形を行うことができる。ただし、ワックスの種類や生分解性高分子物質などの種類や組成比によってはペレットがブロッキングしやすくなることから、表面にブロッキング防止用の粉体を付着させた状態でペレットとすることが好ましい。ペレット形状に加工する方法としては、樹脂ペレットを製造するための一般的な方法を用いることができる。

本実施形態のワックス組成物は種々の方法で調製できる。一例としては、ワックスとポリイソプレン又は天然ゴムとを加圧ニーダー等の混練機に供給し高剪断力で混練することで得られる。別の例として、ポリイソプレン又は天然ゴムをn-ヘプタン等の溶剤に溶解させ、更にワックスを溶解させた後、溶剤を揮発等の手段によって除去することで得られる。これらの方法のうち、溶剤の残留がない、溶剤を使用しないので環境負荷が小さい、製造コストが低い点から前者の方法を用いることが好ましい。何れの方法を採用する場合でも、ポリイソプレンや天然ゴムは加熱すると酸化によって著しく分子量が低下するので、加熱する際には、その時間を極力短くしたり、窒素雰囲気下で行う等の配慮をするのがよい。特に、溶剤を用いてワックス組成物を調整する場合には、溶剤を揮散させる時に分子量が低下し、熔融粘度の著しい低下が生じやすいので

注意が必要である。

本実施形態のワックス組成物は、例えばこれを加熱して熔融させた状態下に生分解性樹脂や紙などで作られた生分解性の容器の表面にコートすることができる。

- 5      また、本実施形態のワックス組成物で紙材料の表面を被覆し、さらにその上に生分解性樹脂層を積層し、生分解性積層体を得ることもできる。

更に、本実施形態のワックス組成物をTダイ法やインフレーション法で熔融成形して防湿層を得、この防湿層の少なくとも一面を生分解性樹脂層で被覆し、防湿性を有する多層の生分解性フィルム（以下、第2実施形態の生分解製フィルムともいう。）を得ることもできる。生分解性  
10      フィルムの好ましい実施形態においては、防湿層の各面に生分解性樹脂層が積層されてなる3層構造となっている。この生分解性フィルムは、防湿層の存在によって防湿性を有している。生分解性フィルムの防湿性の程度は、カップ法（J I S    Z    0 2 0 8    条件B）により測定した  
15      透湿度を厚み1 mmのフィルムに換算した値が $2 \text{ g} \cdot \text{mm} / \text{m}^2 \cdot 24 \text{ h}$  r以下であることが好ましく、 $1 \text{ g} \cdot \text{mm} / \text{m}^2 \cdot 24 \text{ h}$  r以下であることがより好ましい。この透湿度の値は、ワックス組成物の透湿度に関して先に述べた算出法と同様にして算出される。

本実施形態の生分解性フィルムは、これを生分解性の容器本体の表面  
20      に被覆する観点から、熱成形性を有していることが好ましい。熱成形性とは、生分解性フィルムを所定温度に加熱した後、該フィルムの両端を把持し一軸方向に沿って互いに逆方向に引っ張って2倍の長さに引き伸ばしたときに、該生分解性フィルムが破断しないことをいう。生分解性フィルムを熱成形する場合の加熱温度は、使用する生分解性樹脂、防湿  
25      層に使用するワックス、熱成形の方法（真空／圧空成形、プレス成形等）により適宜選択する。この加熱温度は、生分解性フィルム全体が適切な厚み分布で成形され、且つ十分な防湿性が得られるよう選択する。フィ



ルムの厚みのムラを抑えることができる加熱温度で熱成形することが、十分な防湿性を得る上で重要である。その条件を満足する加熱温度は、当業者が一般的に行う最適条件化の手法により求めることができる。

熱成形性の有無の判断においても、実際の成形と同様に良好な結果を得ることができる加熱温度を選択する。加熱温度の目安としては、例えば、以下の温度範囲で条件を選択することで良好な結果が得られる場合が多い。生分解性樹脂が結晶性樹脂の場合は、DSC測定により得た融解曲線から求めた熔融ピーク温度 $T_m$  (°C) に対し、 $(T_m - 40^\circ\text{C}) \sim (T_m + 20^\circ\text{C})$  の範囲である。ただし、熔融ピーク温度が複数存在する場合には、融解熱量が最も大きな熔融ピークを選択する。生分解性樹脂が非結晶性樹脂の場合は、そのガラス転移温度 $T_g$  に対して $T_g \sim T_g + 50^\circ\text{C}$  の範囲である。

本実施形態の生分解性フィルムは、現実的な期間での分解を考慮すると、例えば、コンポスト等では2～3ヶ月の期間で分解できる点から、その生分解度（好氣的究極生分解度：JIS K 6950又はJIS K 6953）が30%以上であることが好ましく、50%以上であることがより好ましく、60%以上であることがさらに好ましい。

本実施形態の生分解性フィルムは、防湿層を構成する前記実施形態の生分解性ワックス組成物と、生分解性樹脂層を構成する生分解性樹脂とを原料とし、例えばマルチマニホールドのTダイを用いた熔融共押出成形することで得られる。本実施形態の生分解性ワックス組成物は、先に述べた通り熔融成形に適した流動特性を有しているので、この共押出成形は首尾良く行うことができる。得られたフィルムは必要に応じて一軸又は二軸延伸される。

本実施形態の生分解性フィルムは、フィルム強度及びフィルムの成形



性の点からその全厚みが10～2000 $\mu$ mであることが好ましく、200～1000 $\mu$ mであることがより好ましい。本実施形態の生分解性フィルムにおける生分解性樹脂層の厚みは必要に応じて適宜選択することができる。フィルム強度とフィルムの取扱い性の点からは5～1000 $\mu$ mであることが好ましく、10～500 $\mu$ mであることがより好ましい。一方、防湿層の厚みは、実用的な防湿性を与えるとともに高温での生分解性フィルムの強度を維持する点から1～500 $\mu$ mであることが好ましく、10～100 $\mu$ mであることがより好ましい。

本実施形態の生分解性フィルムの用途は広く、先に述べた通り生分解性容器における容器本体表面の被覆に用いられるほか、各種包装材フィルムや板紙（生分解性の紙）と生分解性フィルムとをラミネートしたラミネート紙等の生分解性防湿紙、該生分解性防湿紙からカップや箱等の形態に折曲加工や成形した生分解性容器にも用いることができる。

本実施形態の生分解性フィルムにおける生分解性樹脂層は、生分解性を有する脂肪族ポリエステル系樹脂、脂肪族ポリエステルと芳香族ポリエステルとの共重合系樹脂、又は脂肪族ポリカーボネート系樹脂から構成されていることが好ましい。具体的には、ポリエチレンサクシネート（PES）、ポリブチレンサクシネート（PBS）、ポリ乳酸（PLA）、ポリグリコール酸（PGA）、ポリヒドロキシブチレート（PHB）、ポリカプロラクトン（PCL）、ポリカプロラクトンとポリブチレンサクシネートとの混合物若しくは共重合物（PCL/PBS）、ポリヒドロキシブチレートとポリヒドロキシバリレートとの共重合物（PHB/PHV）、ポリブチレンサクシネートとポリブチレンアジペートとの混合物若しくは共重合物（PBS/PBA）、ポリエチレンテレフタレートとポリエチレンサクシネートとの共重合物（PET/PES）、ポリブチレンテレフタレートとポリブチレンアジペートとの共重合物（PBT/PBA）等が挙げられる。これらの樹脂は、単独で又は二以上を組

み合わせて用いることができる。

本実施形態の生分解性フィルムにおける生分解性樹脂層は、実用的な期間で分解する点から、生分解度（好氣的究極生分解度：J I S K 6 9 5 0 又は J I S K 6 9 5 3）が、30%以上であることが好ましく、50%以上であることがより好ましく、60%以上であることがさらに好ましい。

本実施形態の生分解性フィルムを生分解性の容器の表面に被覆することで、生分解性容器が得られる。生分解性フィルムが防湿層と生分解性樹脂層の2層構造である場合、該生分解性フィルムは生分解性樹脂層が容器と反対側を向くように被覆される。前記容器は、生分解性を有するものであればその素材に特に制限はない。容器の生分解度（好氣的究極生分解度：J I S K 6 9 5 0 又は J I S K 6 9 5 3）は、30%以上であることが好ましく、50%以上であることがより好ましく、60%以上であることが更に好ましい。容器の素材としては、例えば、天然繊維、生分解性の合成繊維等の繊維、天然高分子、前記生分解性樹脂、及びこれらの混合物等が挙げられる。天然繊維としては、木材パルプ繊維、非木材パルプ繊維、絹、羊毛等が挙げられる。生分解性の合成繊維としては、ポリ乳酸繊維、ビニロン、レーヨン等が挙げられる。天然高分子としては、でん粉、たん白質等が挙げられる。容器の形状に特に制限はない。例えば、カップ、どんぶり、ボトル、皿、鉢、箱、筒等の各種の容器形状が挙げられる。

生分解性フィルムで被覆する容器の部位は、容器の用途、形態等に応じて適宜選択することができる。例えば、容器の内面、容器の外面等の被覆が挙げられる。特にカップ等に用いる場合には、少なくとも容器の内表面が生分解性フィルムで被覆されていることが好ましい。

容器の表面に生分解性フィルムを被覆する場合は、容器の表面と生分解性フィルムとの間に接着剤を介して接合することもでき、又は容器の表面と生分解性フィルムとを直接接合することもできる。接着剤を用いる場合、該接着剤は、生分解性を有するものであればその組成に特に制限はない。接着剤は生分解性フィルムと同様に生分解度（好氣的究極生分解度：J I S K 6 9 5 0又はJ I S K 6 9 5 3）が30%以上であるものが好ましく、50%以上であるものがより好ましく、60%以上であるものがさらに好ましい。具体的にはデンプン、ポリビニルアルコール、にかわ、ゼラチン、カゼイン、未加硫の天然ゴム、未加硫のポリイソプレン等が挙げられる。また、接着剤として、加熱溶融により容器に接着させるために容器側の生分解性樹脂層よりも融点の低い生分解性樹脂や各種天然樹脂等を用いることもできる。溶媒の揮散により接着させる接着剤を用いる場合には、接着成分を含む溶液を生分解性フィルムと容器との何れか一方若しくは両方に塗布することもでき、接着成分を生分解性フィルム若しくは容器の何れか一方の表面に形成し溶媒を他の一方に塗布することにより接着させることもできる。容器の表面と生分解性フィルムとを直接接合する方法としては、例えば、生分解性フィルムを容器の内面に配した後、容器をその外面側から加熱した状態で真空成形又は圧空成形を行う方法が挙げられる。

次に、第3実施形態のワックス組成物を、その好ましい実施形態に基づき説明する。

本実施形態のワックス組成物は、D S Cによる熱量測定において100℃以上に吸熱ピークを有する高温融解ワックス成分及び40℃以上100℃未満に吸熱ピークを有する低温融解ワックス成分を含有し、これら両ワックス成分を主体とする。両ワックス成分を主体とするとは、前記高温融解ワックス成分及び前記低温融解ワックス成分の合計含有量が、含有される全成分の中で体積分率で最も多くを占めることを意味す

る。ワックス成分を主成分とすることで十分な防湿性を発現させることができる。より高い防湿性を得る上では、両ワックス成分が好ましくは、体積分率で40重量%超、より好ましくは50重量%超である。

ここで、DSCによる熱量測定において100℃以上に吸熱ピークを  
5 有する高温融解ワックス成分（以下、高温融解ワックス成分ともいう）  
とは、昇温速度を5℃/minとした、DSCによる熱量測定において、  
温度100℃以上の領域に吸熱ピークを有する成分を意味し、40℃以  
上100℃未満に吸熱ピークを有する低温融解ワックス成分（以下、低  
温融解ワックス成分ともいう）とは、同条件の熱量測定において温度4  
10 0℃以上100℃未満の領域に吸熱ピークを有する成分を意味する。両  
ワックス成分の吸熱ピークは、結晶の融解に伴うものである。

尚、本実施形態においては、DSCによる熱量測定は、前述の第1実  
施形態におけると同様の方法で行う。ただし、ワックス組成物（高温融  
解ワックス成分、低温融解ワックス成分及び高分子物質を含む組成物）  
15 を試料として行う。

本実施形態のワックス組成物の透湿度は、前述の透湿度の算出方法と  
同様にして算出される。

本実施形態のワックス組成物は、上述した通り、高温融解ワックス成  
分と低温融解ワックス成分とを含有する。低温融解ワックス成分のみを  
20 含有する場合には、ワックス組成物を溶融させると粘度が低下し、溶融  
成形等の加工を行いにくい場合があるが、高温融解ワックス成分を組み  
合わせることで、防湿性の低下を抑制しつつ、Tダイ法やインフレーション  
法による溶融成形その他の加工時の加工性を向上させることができる。  
る。

25 高温融解ワックス成分と低温融解ワックス成分は、相異なる種類のワ  
ックスであることが好ましい。

高温融解ワックス成分の前記吸熱ピークの温度は120～250℃、特に150～200℃であることが好ましく、低温融解ワックス成分の前記吸熱ピークの温度は40～90℃、特に50～80℃であることが好ましく、両ワックス成分の吸熱ピークの温度の差は20～200℃、  
5 さらに40～180℃、特に50～160℃であることが好ましい。

本実施形態のワックス組成物は、加工性が良好となる高い熔融粘度を得るために、ワックス組成物を試料としてのDSCによる熱量測定（昇温速度5℃/min）において、100℃より高温側の吸熱量 $\Delta H$ と、100℃より低温側の吸熱量 $\Delta H$ との比（前者／後者）が0.1～5.0  
10 0であることが好ましく、0.2～4.0であることがより好ましく、特に0.2～3.0であることが好ましい。尚、この熱量測定においては、ワックス組成物（高温融解ワックス成分、低温融解ワックス成分及び高分子物質を含む組成物）を試料とする。

高温融解ワックス成分として好ましく用いられるワックスとしては、  
15 N，N'－エチレンビスラウリン酸アミド、N，N'－エチレンビスステアリン酸アミド、N，N'－メチレンビスステアリン酸アミド、N，N'－エチレンビス－12－ヒドロキシステアリン酸アミド、ステアリン酸モノメチロールアミド、N，N'－ジステアリルテレフタル酸アミド等のN－置換脂肪酸アミド、12－ヒドロキシステアリン酸アミド等の脂肪  
20 酸アミド、12－ヒドロキシステアリン酸リチウム、12－ヒドロキシステアリン酸カルシウム等の金属石けんが挙げられる。これらの中でも、加工性の良好な温度範囲を広く確保する点から130℃以上の吸熱ピークを有するN－置換脂肪酸アミドが好ましく、特に炭素数が6～18の脂肪酸を用いたN，N'－エチレンビスアミド等が好ましい。また、炭素  
25 数の異なる脂肪酸を含む混合脂肪酸を原料として用いた脂肪酸アミドも好ましく使用できる。これらの中でも生分解性を有するワックスを用いることが好ましいが、生分解性でないワックスを用いることもできる。



生分解性を有するワックスを用いる場合は、生分解度（好氣的究極生分解度：J I S K 6 9 5 0 又は 6 9 5 3）が 3 0 % 以上であるものが好ましく、5 0 % 以上であるものがより好ましく、6 0 % 以上であるものがさらに好ましい。

- 5 低温融解ワックス成分として好ましく用いられるワックスとしては、植物系ワックス、動物系ワックス、石油系ワックス等があり、例えば、前記文献 1 に記載のワックスが使用可能である。

- 植物系ワックスとしては、ライスワックス、カルナバワックス、キャンデリラワックス等が挙げられる。動物系ワックスとしては、蜜ろう、  
10 ラノリン、鯨ろう等が挙げられる。石油系ワックスとしては、例えば、マイクロクリスタリンワックス、パラフィンワックス等が挙げられ、これらの中でもマイクロクリスタリンワックスが好ましい。これらのワックスは、何れも生分解性のワックスであるが、生分解性でないワックスを用いることもできる。

- 15 本実施形態のワックス組成物は、高温融解ワックス成分及び低温融解ワックス成分を含む全ワックス成分以外に高分子物質を含有する。ワックス組成物がワックス成分のみからなる場合には、本実施形態のワックス組成物を溶融させると粘度が低下して、溶融成形その他の加工を行いにくい場合がある。そのため、ワックス成分以外の高分子物質を含有さ  
20 せる。

前記高分子物質としては、前記第 1 実施形態のワックス組成物におけると同様の高分子物質が用いられる。

- その中でも、非晶性で、ワックスの融点以上においてワックスと相溶性を有するものが好ましく、特にポリイソプレン又は天然ゴムが好まし  
25 い。

- ワックス組成物の熔融粘度を上げるためには、高分子物質を組成物中に配合することが考えられるが、その場合の高分子物質はワックス組成物の防湿性を低下させる傾向がある。本発明者らが鋭意検討したところ、高分子物質としてポリイソプレン又は天然ゴムを組成物中に配合すると、得られるワックス組成物の防湿性を低下させることなく、熔融粘度を上げられることが判明した。また、後述するように、生分解性のワックスと組み合わせて生分解性のワックス組成物とすることができる。更に、ポリイソプレン又は天然ゴムを配合することで、ワックス組成物を成形して得られる成形物に耐熱性や強度を付与できる
- 5      と、得られるワックス組成物の防湿性を低下させることなく、熔融粘度を上げられることが判明した。また、後述するように、生分解性のワックスと組み合わせて生分解性のワックス組成物とすることができる。更に、ポリイソプレン又は天然ゴムを配合することで、ワックス組成物を成形して得られる成形物に耐熱性や強度を付与できる
- 10    という付加的効果もある。

ワックス組成物の防湿性を低下させることなく、熔融成形に適した熔融流動特性等を得るためには、ワックス組成物中へのポリイソプレンや天然ゴム等の高分子物質の配合量は5～35重量%、特に15～30重量%であることが好ましい。

- 15      ワックス組成物の熔融流動特性を熔融成形に適したものとするには、ポリイソプレンや天然ゴムの分子量を適切にコントロールすることが有利であることが本発明者らの検討によって判明した。例えばポリイソプレンについては、その重量平均分子量を200,000以上、特に400,000以上、より好ましくは700,000以上の範囲にコントロールすると、ワックス組成物の熔融流動特性を熔融成形に適したもの
- 20      することができる。重量平均分子量の上限は、熔融粘度を高める点で特に制約はないが、ワックス組成物の製造のしやすさを考慮すると4,000,000以下、特に2,000,000以下が好ましい。重量平均分子量は、GPC測定によって求められる。ワックス組成物をクロロホルムに溶解させた後、未融解のワックスを濾過により除去した溶液で測定
- 25      し、その結果と分子量既知のポリスチレン標準サンプルの測定で得た校正曲線とから重量平均分子量を求める。

本実施形態のワックス組成物は、生分解性の防湿性物品（防湿性フィルム、防湿性容器を含む）等を得る観点から、前記高温融解ワックス成分、前記低温融解ワックス成分及び前記高分子物質の何れもが生分解性であることが好ましい。

- 5 生分解性のワックス組成物は、その生分解性を確保する観点から、前記高温融解ワックス成分としてのワックス及び前記低温融解ワックス成分としてのワックスとして、それぞれ、その生分解度（J I S K 6 9 5 0又は6 9 5 3）が3 0 %以上であるものを用いることが好ましく、5 0 %以上であるものを用いることが更に好ましく、6 0 %以上のもの  
10 を用いることが一層好ましい。

前記高分子物質としては、前記ポリイソプレン又は天然ゴムが好ましい。ポリイソプレンや天然ゴムは一般の土壤に生息する菌によって分解されるので、これらの成分をワックス組成物に配合しても生分解性を損なわれることがない。

- 15 本実施形態のワックス組成物は、Tダイ成形やインフレーション成形等の熔融成形に適したものであり、通常、1 2 5℃、1 . 2 k g f 荷重下でのM F Rが0 . 1 ~ 1 0 0 0 g / 1 0 m i nであり、0 . 5 ~ 1 0 0 g / 1 0 m i nであることが、さらには1 ~ 3 0 g / 1 0 m i nであることが、熔融成形その他の加工の加工性の向上の観点からより好まし  
20 い。

- より高温での熔融成形その他の加工の加工性を向上させる観点から、本実施形態のワックス組成物は1 5 0℃、1 . 2 k g f 荷重下でのM F Rが0 . 1 ~ 1 0 0 0 g / 1 0 m i nであり、0 . 5 ~ 1 0 0 g / 1 0 m i nであることが、さらには1 ~ 3 0 g / 1 0 m i nであることが好  
25 ましい。

本実施形態のワックス組成物は種々の方法で調製できる。一例としては、高温融解ワックス成分として用いるワックス、低温融解ワックス成

分として用いるワックス及び前記高分子物質（ポリイソプレン、天然ゴム等）とを加圧ニーダー等の混練機に供給し高剪断力で混練することで得られる。別の例として、高分子物質（ポリイソプレン、天然ゴム等）をn-ヘプタン等の溶剤に溶解させ、更にワックス成分を溶解させた後、  
5 溶剤を揮発等の手段によって除去することで得られる。

本実施形態のワックス組成物は、上述したように、例えばこれを加熱して熔融させた状態下に生分解性の樹脂や紙製の容器等の表面にコートすることができる。また、本発明のワックス組成物をTダイ法やインフレーション法で熔融成形して防湿層を得、この防湿層の少なくとも一面  
10 に樹脂層又は紙を積層して、防湿性を有する多層の防湿性フィルム又は防湿紙となすこともできる。

次に、本発明の防湿性物品の製造方法をその好ましい実施形態に基づいて説明する。本発明の防湿性物品の製造方法により製造される防湿性物品には、上述のようにして得られる防湿性の容器、防湿性フィルム、  
15 防湿紙等が含まれる。

本実施形態の防湿性物品の製造方法は、上述の第3実施形態のワックス組成物を100℃以上の温度に加熱して熔融させ、これを樹脂のシートやフィルム、紙、樹脂や紙からなる容器などの表面にコートしてワックス組成物の層を形成する工程を具備する積層体の製造方法において、  
20 前記ワックス組成物の加熱温度を、ワックス組成物を試料にしたDSCによる熱量測定（昇温速度5℃/min）において該加熱温度より高温側の吸熱量と該加熱温度より低温側の吸熱量との比（前者/後者）が0.1～5.0となる温度とすることが挙げられる。

また、本発明の防湿性物品の製造方法の他の実施形態としては、上述  
25 の第3実施形態のワックス組成物を押出機を用いてTダイ法やインフレーション法でフィルムやシートに熔融成形する工程を具備する積層体の

製造方法において、押出機などからのワックス組成物の吐出温度を、ワックス組成物を試料にしたDSCによる熱量測定（昇温速度 $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$ ）において該加熱温度より高温側の吸熱量と該加熱温度より低温側の吸熱量との比（前者／後者）が $0.1 \sim 5.0$ となる温度とすることが  
5 挙げられる。

いずれにおいても、該加熱温度より高温側の吸熱量と該加熱温度より低温側の吸熱量との比（前者／後者）が $0.2 \sim 4.0$ であることが好ましく、特に $0.2 \sim 3.0$ であることが好ましい。

次に、本発明の防湿性フィルムをその好ましい実施形態に基づいて説明する。  
10

本実施形態の防湿性フィルムは、前記第3実施形態のワックス組成物における、前記両ワックス成分及び前記高分子物質が何れも生分解性であるワックス組成物を溶融成形して得られる防湿層の各面に生分解性樹脂層が積層されてなる3層構造の生分解性の防湿性フィルムである。防  
15 湿性フィルムは、防湿層の存在によって防湿性を有している。フィルムの防湿性の程度は、カップ法（JIS Z 0208 条件B）により測定した透湿度を厚み $1\text{mm}$ のフィルムに換算した値が $3\text{g}\cdot\text{mm}/\text{m}^2\cdot 24\text{hr}$ 以下であることが好ましく、 $2\text{g}\cdot\text{mm}/\text{m}^2\cdot 24\text{hr}$ 以下であることがより好ましく、 $1\text{g}\cdot\text{mm}/\text{m}^2\cdot 24\text{hr}$ 以下であることがより好ましい。この透湿度の値は、前述の算出法と同様にして算出  
20 される。

以下、このような生分解性の防湿性フィルム（以下、単に生分解性フィルムという）について説明するが、以下の説明は、特に矛盾する場合を除き、生分解性を有しない防湿性フィルムについても同様に適用され  
25 る。

本実施形態の生分解性フィルムは、これを生分解性の容器の表面に被覆する観点から、前記第1実施形態の生分解性フィルムと同様の熱成形



性を有していることが好ましい。熱成形性とは、生分解性フィルムを所定温度に加熱した後、該フィルムの両端を把持し一軸方向に沿って互いに逆方向に引っ張って2倍の長さに引き伸ばしたときに、該生分解性フィルムが破断しないことをいう。生分解性フィルムを熱成形する場合の

5 加熱温度は、使用する生分解性樹脂、防湿層に使用するワックス、熱成形の方法（真空／圧空成形、プレス成形等）により適宜選択する。この加熱温度は、生分解性フィルム全体が適切な厚み分布で成形され、且つ十分な防湿性が得られるよう選択する。フィルムの厚みのムラを抑えることができる加熱温度で熱成形することが、十分な防湿性を得る上で重

10 要である。その条件を満足する加熱温度は、当業者が一般的に行う最適条件化の手法により求めることができる。

熱成形性の有無の判断においても、実際の成形と同様に良好な結果を得ることができる加熱温度を選択する。加熱温度の目安としては、例えば、以下の温度範囲で条件を選択することで良好な結果が得られる場合

15 が多い。生分解性樹脂が結晶性樹脂の場合は、DSCによる熱量測定により得た融解曲線から求めた熔融ピーク温度 $T_m$ （℃）に対し、 $(T_m - 40\text{℃}) \sim (T_m + 20\text{℃})$ の範囲である。ただし、熔融ピーク温度が複数存在する場合には、融解熱量が最も大きな熔融ピークを選択する。生分解性樹脂が非結晶性樹脂の場合は、そのガラス転移温度 $T_g$ に対し

20 て $T_g \sim T_g + 50\text{℃}$ の範囲である。

本実施形態の生分解性フィルムの好ましい生分解度は、前述の第2実施形態の生分解性フィルムと同様である。

本実施形態の生分解性フィルムは、前述の第2実施形態の生分解性フィルムと同様の成形方法で得ることができる。また、その好ましい厚み

25 及び用途も、前述の第2実施形態の生分解性フィルムと同様である。

本実施形態の生分解性フィルムにおける生分解性樹脂層は、前述の実施形態の生分解性フィルムにおけると同様の生分解性樹脂から構成され、その生分解度も同様とすることが好ましい。

本実施形態の生分解性フィルムを生分解性の容器の表面に被覆することで、生分解性容器を得ることができる。生分解性フィルムが防湿層と生分解性樹脂層の2層構造である場合、該生分解性フィルムは生分解性樹脂層が容器側とは反対側を向くように被覆される。前記容器本体は、生分解性を有するものであればその素材に特に制限はない。容器の生分解度（好氣的究極生分解度：J I S K 6 9 5 0又は6 9 5 3）は、3 0 %以上であることが好ましく、5 0 %以上であることがより好ましく、6 0 %以上であることが更に好ましい。容器の素材としては、例えば、天然繊維、生分解性の合成繊維等の繊維、天然高分子、前記生分解性樹脂、及びこれらの混合物等が挙げられる。天然繊維としては、木材パルプ繊維、非木材パルプ繊維、絹、羊毛等が挙げられる。生分解性の合成繊維としては、ポリ乳酸繊維、ビニロン、レーヨン等が挙げられる。天然高分子としては、でん粉、たん白質等が挙げられる。容器の形状に特に制限はない。例えば、カップ、どんぶり、ボトル、皿、鉢、箱、筒等の各種の容器形態が挙げられる。

生分解性フィルムで被覆する容器の部位は、容器の用途、形態等に応じて適宜選択することができる。例えば、容器の内面、容器の外表面等への被覆が挙げられる。特にカップ等に用いる場合には、少なくとも容器の内表面が生分解性フィルムで被覆されていることが好ましい。

本実施形態の生分解性フィルムは、前述の実施形態の生分解性フィルムと同様にして容器の表面に被覆することができる。

以下、実施例により本発明を更に具体的に説明する。なお、本発明は

本実施例に何等制限されるものではない。

下記実施例 1 - 1 ~ 実施例 1 - 3 並びに比較例 1 - 1 及び比較例 1 - 2 のようにしてワックス組成物を作製した。そして、該組成物について、下記のように分散の均一性を評価した。分散性の評価は、該組成物をワ  
5 ックスの融点以上に加熱して脱泡した後、熔融状態のまま 5 mm 程度の厚みに伸ばして目視により粒状の被混合物の存在の有無を確認する方法で行った。なお、前記粒状物は未分散状態であると判断した。

#### 〔実施例 1 - 1〕

東洋精機製作所（株）製ラボプラストミル（30C150 型）の混練  
10 容器に、マイクロクリスタリンワックス（日本精蠟（株）製、品番「H  
i - M i c - 1 0 7 0」、融解完了温度 86℃、主ピーク温度 44℃）  
44 g と素練りした未加硫の天然ゴム（以下、単に天然ゴムという。）  
11 g を入れ、回転数 30 rpm で 10 分間混練を行った。材料投入前  
の混練容器内の温度計の表示温度は 22℃であった。また、混練機のヒ  
15 ターは全て OFF の状態で最後まで混合を行った。混練終了時の混練  
容器内の温度計の表示温度は 37℃であった。37℃における  $\Delta H'$  は  
 $\Delta H$  の 12% であった。ここでは、溶剤を一切使用せずに混練を行った。

得られた組成物は、気泡を含んだ白色のもので、各成分の分散が均一  
であることが確認できた。得られた組成物を 110℃、窒素気流、-5  
20 00 mmHg の乾燥機中で脱泡し、熔融状態で再度分散状態を確認した  
ところ、透明で均一な組成物であり、未分散の天然ゴムの存在は確認で  
きなかった。

#### 〔実施例 1 - 2〕

実施例 1 - 1 において、天然ゴムをイソプレンゴム（日本ゼオン（株）  
25 製、品番 N i p o l - I R 2 2 0 0）に代えて、実施例 1 と同様の方法

でワックス組成物を得た。混練終了時の混練容器内の温度計の表示温度は39℃であった。39℃における $\Delta H'$ は $\Delta H$ の16%であった。ヒーターOFFの状態での混練を行った後、そのまま混合容器のヒーターを85℃に上げて、さらに7.5分間の混練を行った。溶融状態のまま分散状態を確認したところ、85℃での混練により組成物中の気泡は抜け、透明で均一な組成物であり、未分散のイソプレンゴムの存在は確認できなかった。

〔実施例1-3〕

(株)森山製作所製の加圧ニーダー(DS0.3-3型)を用い、加  
10 圧ニーダーの混練容器にマイクロクリスタリンワックス(日本精蠟(株)  
製、品番「Hi-Mic-1070」)1800gと、イソプレンゴム  
(日本ゼオン(株)製、品番Nipol-IR2200)600gを入  
れ、回転数20rpmで5分間混練を行い、次いで同じワックス600  
gを追加投入してさらに10分間の混練を行った。混練は、混合容器及  
15 びローターに10℃の冷却水を流し、ヒーターは全てOFFの状態で行  
った。混練中の混合物の最高温度は37℃で(混合容器内の温度計の表  
示温度)、混練終了後の組成物の温度を接触式温度計で直接測定したと  
ころ、36~42℃であった。36℃における $\Delta H'$ は $\Delta H$ の10%、  
42℃における $\Delta H'$ は $\Delta H$ の22%であった。

20 得られた組成物は、気泡を含んだ白色のもので、均一な分散状態であ  
ることが確認された。得られた組成物を実施例1-1と同じ方法で脱泡  
し、溶融状態で再度分散状態を確認したところ、透明で均一な組成物で  
あり、未分散のイソプレンゴムの存在は確認できなかった。

〔実施例1-4〕

25 実施例1-3と同様の方法で、マイクロクリスタリンワックス(日本  
精蠟(株)製、品番「Hi-Mic-1070」)を、マイクロクリス

タリンワックス（日本精蠟（株）製、品番「H i - M i c - 1 0 8 0」、融解完了温度 8 6 ℃、主ピーク温度 5 9 ℃）に代えて混練を行った。混練中の混合物の最高温度は 4 5 ℃で（混合容器内の温度計の表示温度）、混練終了後の組成物の温度を接触式温度計で直接測定したところ、3 7  
5 ~ 5 0 ℃であった。3 7 ℃における  $\Delta H'$  は  $\Delta H$  の 0 %、5 0 ℃における  $\Delta H'$  は  $\Delta H$  の 5 %であった。

得られた組成物は、気泡を含んだ白色のもので、均一な分散状態であることが確認できた。得られた組成物を実施例 1 - 1 と同じ方法で脱泡し、熔融状態で再度分散状態を確認したところ、透明で均一な組成物で  
10 あり、未分散のイソプレンゴムの存在は確認できなかった。

#### 〔実施例 1 - 5〕

実施例 1 - 1 において、天然ゴムに代えて無機フィラーである親油性スメクタイト（コープケミカル（株）製、品番「ルーセントライト S A N」）を用いた以外は、実施例 1 - 1 と同様の方法でワックス組成物を得た。  
15 混練終了時の混練容器内の温度計の表示温度は 3 5 ℃であった。3 5 ℃における  $\Delta H'$  は  $\Delta H$  の 9 %であった。得られた組成物は、全体に白色で均一な分散状態であることが確認できた。得られた組成物を実施例 1 - 1 と同じ方法で脱泡し、熔融状態で再度分散状態を確認したところ、乳白色で均一な組成物であった。

#### 20 〔比較例 1 - 1〕

混合容器のヒーターを 9 0 ℃にした以外は、実施例 1 - 1 と同様の方法で混合を行った。ワックスが融解により粘度が大きく低下したために、分散されないままの天然ゴムがローターと混合容器に貼り付いた状態となり、混練を続けてもその状態に変化はなかった。

#### 25 〔比較例 1 - 2〕



シクロヘキサン 80 wt %、キャンデリラワックス 16 wt %、天然  
ゴム 4 wt % の塗工液を以下の方法で作製した。シクロヘキサンに脱タ  
ンパク処理を行った天然ゴム（住友ゴム工業（株）製）を攪拌しながら  
3 日間溶解し、次いで細かく粉碎したキャンデリラワックス（（株）セ  
5 ラリカ野田製、融点 64℃）を加えて 70℃ にて溶解させ、それを塗工  
液とした。得られた塗工液（固形分 20 wt %）を紙（コートボール）  
の上に #40 のバーコーターにて室温で塗布し風乾させ、乾燥後に再度  
同じバーコーターで塗布して風乾により乾燥させた。2 度目の塗工終了  
後から、以下の方法で塗膜中の残留シクロヘキサン量を測定した。紙の  
10 上から塗膜を 1 g かき取り、10 ml に溶解させた後に、それを試料と  
して水素炎イオン化検出器を装備したガスクロマトグラフ（アジレント  
ー 6890）にて残留するシクロヘキサンの量を測定した。その結果を  
表 1-1 に示す。表 1-1 に示したように、この方法で得られた組成物  
の塗膜には、7 日経ってもシクロヘキサンが 0.1 wt % も残留してい  
15 た。

〔表 1-1〕

塗工後の履歴(日)	塗膜に含まれるシクロヘキサン量(wt%)
1	14
2	2
3	0.5
7	0.1

## 〔比較例 1-3〕

混合容器のヒーターを 90℃ にした以外は、実施例 1-5 と同様の方  
法で混合を行った。フィラーは凝集したままで、ワックス中に均一分  
20 散させることが不可能であった。

## 〔実施例 2-1〕

ワックスとして、日本精蠟（株）製のマイクロクリスタリンワックス  
である「Hi-Mic-1070」（商品名）を用いた。生分解性高分

子物質としてポリイソブレン（日本ゼオン（株）製の I R 2 2 0 0 ）を用いた。ワックスとポリイソブレンとを 7 : 3 の重量比で混合し、10℃の冷却水を循環させた加圧ニーダーを用いて15分間混練してワックス組成物を得た。得られたワックス組成物は気泡を含んでいるため、真空  
5 オープン中において100℃、窒素フローのもとで24時間の脱泡を行った。ワックス組成物の D S C による熱量測定結果を図3に示す。

次いで、ポリカプロラクトンとポリエチレンサクシネートとをポリマーブレンドした生分解性樹脂（ダイセル化学工業（株）製 P H B 0 5 ）からなるフィルムの間にワックス組成物の層を挟み、プレス成形機によ  
10 って成形して3層構造の生分解性フィルムを作製した。得られた生分解性フィルムは全厚400μm、ワックス組成物の層の厚みが200μm、各生分解性樹脂フィルムの厚みが100μmであった。

#### 〔実施例 2 - 2〕

ワックスとポリイソブレンとを 8 : 2 の重量比で混合した。これら以  
15 外は実施例 2 - 1 と同様としてワックス組成物を作製し、3層構造の生分解性フィルムを得た。

#### 〔実施例 2 - 3〕

実施例 2 - 2 のワックス組成物に、架橋剤として過酸化ラウロイルを1重量%添加してラボプラストミルにて混練した後、窒素雰囲気下、1  
20 00℃のオープンにて40時間加熱し、ポリイソブレンを架橋したワックス組成物を得た。このワックス組成物を用いて3層構造の生分解性フィルムを得た。

#### 〔比較例 2 - 1〕

混練時間を60分とする以外は実施例 2 - 1 と同様としてワックス組  
25 成物を作製し、3層構造の生分解性フィルムを得た。

## 〔実施例 2 - 4〕

実施例 2 - 1 で得られたワックス組成物及び生分解性樹脂（ポリカプロラクトンとポリエチレンサクシネートとのポリマーブレンドした生分解性樹脂（ダイセル化学工業（株）製 PHB 05））を原料として用い、  
5 Tダイ法による溶融共押出によって防湿層とその各面に積層された生分解性樹脂層との 3 層構造の生分解性フィルムを得た。用いた T ダイは、3 種 3 層のマルチマニホールドタイプである。ここでは、実施例 2 - 1 の脱泡後のワックス組成物を粉碎機にて冷凍粉碎して粒径 3 mm 程度のペレットを得、得られたペレット 100 重量部に対し、ブロッキング防  
10 止剤として無水シリカ粒子（日本アエロジル（株）製 R 9 2 7、平均粒径 12  $\mu$ m）を 1 重量部付着させた。得られた生分解性フィルムにおける防湿層はワックス組成物から構成されており、各生分解性樹脂層は生分解性樹脂から構成されていた。得られた生分解性フィルムは全厚 400  $\mu$ m、防湿層の厚みが 200  $\mu$ m、各生分解性樹脂層の厚みが 100  
15  $\mu$ m であった。

## 〔実施例 2 - 5〕

実施例 2 - 1 で得られたワックス組成物に代えて実施例 2 - 2 で得られたワックス組成物を使用する以外は実施例 2 - 4 と同様として 3 層構造の生分解性フィルムを得た。

## 20 〔比較例 2 - 2〕

実施例 2 - 1 で得られたワックス組成物に代えて Hi-Mic-10 と脱タンパク処理した天然ゴム（住友ゴム工業（株）製）を重量比 9 : 1 で n-ヘプタンに溶解させて十分に混合した後、120℃、72 時間の加熱により n-ヘプタンを揮散させて得られたワックス組成物を  
25 使用する以外は実施例 2 - 4 と同様として 3 層構造の生分解性フィルムの成形を試みた。しかし、ワックス組成物がダイの中央部に、生分解性樹脂がダイの両端部に偏って吐出されてしまい、3 層フィルムを成形す

ることができなかった。ここで用いたワックス組成物のMFRは200  
0 g / 10 minであった。

#### 〔実施例2-6〕

実施例2-1で得られたワックス組成物及び生分解性樹脂フィルム  
5 (ポリカプロラクトンとポリエチレンサクシネートとのポリマーブレンドした生分解性樹脂(ダイセル化学工業(株)製PHB05))を用い、プレス成形機によって防湿層と生分解性樹脂層との2層構造の生分解性フィルムを得た。得られた生分解性フィルムにおける防湿層はワックス組成物から構成されており、各生分解性樹脂層は生分解性樹脂から構成  
10 されていた。得られた生分解性フィルムは全厚200  $\mu$ m、防湿層の厚みが100  $\mu$ m、生分解性樹脂層の厚みが100  $\mu$ mであった。このフィルムをプレス成形機によって紙(坪量370 g / m<sup>2</sup>のコートボール)とラミネートし、紙/防湿層/生分解性樹脂層からなる積層体を得た。得られた積層体は、ワックス組成物の紙への浸透が少なく、均一な厚み  
15 の防湿層を有していた。

#### 〔実施例2-7〕

実施例2-4で得られた生分解性フィルムを真空成形によってパルプ  
モールド製容器本体の内面に接合して被覆し、カップ形状の生分解性容器を得た。容器本体の寸法形状は上端開口部内径90 mm、底部内径6  
20 0 mm、高さ100 mm、内表面積約300 cm<sup>2</sup>であった。

#### 〔性能評価〕

実施例2-1～2-3及び比較例2-1のワックス組成物について前述の方法で透湿度及びMFRを測定した。またポリイソプレンの重量平均分子量を測定した。結果を表2-1に示す。また実施例2-1～2-  
25 3及び比較例2-1の生分解性フィルムについて、以下の方法で接着性と可撓性を評価した。それらの結果を表2-1に示す。更に実施例2-

4 及び 2 - 5 並びに比較例 2 - 2 の生分解性フィルムについて、前述の方法で透湿度を測定し、また成形性を評価した。それらの結果を表 2 - 2 に示す。ここで、ワックス組成物の透湿度については、3 層フィルムの透湿度の測定値と、生分解性樹脂フィルム層 (PHB 05、100  $\mu$  m) の透湿度の測定値 132 g / m<sup>2</sup> · 24 h r から求めた。また、紙 / 防湿層 / 生分解性樹脂層からなる積層体 (実施例 2 - 6) の透湿度は、厚み換算しない値が 10 g / m<sup>2</sup> · 24 h r であり、生分解性容器 (実施例 2 - 7) については、以下の方法で平均透湿度を算出したところ 0.8 g · mm / m<sup>2</sup> · 24 h r であった。

10      [生分解性フィルムの接着性の評価]

得られた 3 層フィルムを 20 mm 幅の短冊状に切り、その端部を手で折り曲げた際に、ワックス組成物層と生分解性樹脂層との界面が剥離しなかった場合を○、界面が剥離した場合を×とした。

[生分解性フィルムのワックス組成物層の可撓性の評価]

15      得られた 3 層フィルムを 20 mm 幅の短冊状に切り、それを 90° の角度に折り曲げた際に、ワックス組成物層に割れが生じなかった場合を○、割れが生じた場合を×とする。

[生分解性容器の平均透湿度の測定]

20      生分解性容器に塩化カルシウム 50 g を入れた後、開口部にガラス板を載せ、開口部とガラス板との隙間をろうで固めて密閉した。温度 40℃、90 RH% の恒温恒湿槽に容器を一週間放置し、放置前後の総重量 (容器、塩化カルシウム、ろう、ガラス板) の差を求めた。そして、真空成形時のフィルムの延伸率を 400% (面積)、カップ内面積を 0.03 m<sup>2</sup> と仮定し、次式に従って平均透湿度を求めた。



$$\text{平均透湿度} = \frac{\text{放置前後の重量差(g)}}{\text{放置日数(日)} \times \text{カップ内面積(m}^2\text{)}} \times \frac{\text{成形前フィルム厚み(mm)}}{\text{フィルムの延伸率(\%)}}$$

表 2-1 から明らかなように、実施例 2-1 及び 2-3 のワックス組成物は透湿度が低く、また MFR が低く熔融粘度が高いものであることが判る。実施例 2-2 のワックス組成物は防湿性は高いが、MFR が高く熔融粘度が低いことが判る。表 2-2 から明らかなように、MFR の高いワックス組成物を用いることで、共押出成形によって均一で透湿度が低い多層フィルムを作製することが可能であることが判る。

〔表2-1〕

	ワックス組成物						生分解性フィルム	
	透湿度 g・mm/m <sup>2</sup> ・24h	MFR g/10min	ワックス wt%	ポリイブレン wt%	ポリイブレン 重量平均分子量	ΔH1/ΔH2 %	接着性	可撓性
実施例 2-1	1.5	40	70	30	490,000	49	○	○
実施例 2-2	1.2	790	80	20	520,000	49	○	○
実施例 2-3	1.2	14	80	20	560,000	49	○	○
比較例 2-1	1.2	2000 以上	70	30	190,000	—	—	—

〔表2-2〕

	生分解性フィルム	
	成形性	透湿度 g・mm/m <sup>2</sup> ・24h
実施例 2-4	○	3
実施例 2-5	○	2.4
比較例 2-2	×	測定不可

また表 2 - 1 から明らかなように、実施例のワックス組成物を用いることで、生分解性フィルムの接着性及び可撓性が良好となることが判る。表には示していないが、実施例の生分解性フィルムは、40℃の環境下でも防湿性等の性能上の問題がなく、ワックス組成物が十分な耐熱性を有していることが判った。また、透湿度が低い紙を基材とした積層体や生分解性容器が得られることも判る。なお表には示していないが、各実験例のワックス組成物、生分解性フィルム及び生分解性容器は何れも生分解性を有していることを確認した。また、共押出成形によって3層フィルムを成形した際、ペレットにブロッキング防止剤を使用して成形を行うことで、ブロッキング防止剤を使用しない場合と比較して、成形機のペレット供給部分において、ワックス組成物の付着やペレット同士のブロッキング防止に対して効果があることを確認した。

### 〔実施例 3 - 1〕

#### (1) ワックス組成物の製造

花王（株）製のエチレン・ビス脂肪酸アマイドである「カオーワックス EB - FF」（商品名）と、日本精蠟（株）製のマイクロクリスタリンワックスである「Hi - Mic - 1045」（商品名）とを50 : 50の重量比で150℃で混合した。尚、「EB - FF」について単独にてDSCによる熱量測定（昇温速度5℃/min）をしたところ、その吸熱ピークの温度（融点）は146℃であった。この混合ワックスとポリイソブレンとを8 : 2の重量比で混合し、加圧ニーダーを用いて混練してマスターバッチを得た。

このワックス組成物について、昇温速度5℃/minでDSCを用いて熱量測定したところ、前者のワックスは約140℃に大きな吸熱ピークを有し、後者のワックスは約42℃に大きな吸熱ピーク（メインピーク）を示した。また、このワックス組成物についての熱量測定における100℃より高温側の吸熱量 $\Delta H$ と100℃より低温側の吸熱量 $\Delta H$ と

の比（前者／後者）、125℃、1.2kgf荷重下でのMFR、及び150℃、1.2kgf荷重下でのMFRを表3-2に示した。

図4は、このワックス組成物についてのDSC曲線を示す図であり、Hが高温融解ワックス成分、Lが低温融解ワックス成分である。尚、吸熱量の比の算出においては、一つのピークが100°の線をまたぐ場合、100°を堺にして高温融解ワックス成分側と低温融解ワックス成分側とに分けて計算する。

〔実施例3-2～3-4，比較例3-1，3-2〕

実施例3-1と同様に、表3-1に示した混合ワックスを用い、実施例3-1～3-4、比較例3-1及び3-2のワックス組成物を製造した。

各ワックス組成物についての熱量測定における100℃より高温側の吸熱量 $\Delta H$ と100℃より低温側の吸熱量 $\Delta H$ との比（前者／後者）、125℃、1.2kgf荷重下でのMFR、及び150℃、1.2kgf荷重下でのMFRを表3-2に示した。

〔実施例3-5〕

実施例3-1で得られたワックス組成物及び生分解性樹脂を原料として用い、プレス法によって防湿層とその各面に積層された生分解性樹脂層との3層構造のフィルムを得た。得られた防湿性フィルムにおける防湿層はワックス組成物から構成されており、各生分解性樹脂層は生分解性樹脂から構成されていた。生分解性樹脂は、ポリカプロラクトンとポリエチレンサクシネートとのポリマーブレンドであった。得られたフィルムを2軸延伸して防湿性フィルムを得た。得られた防湿性フィルムは全厚100 $\mu\text{m}$ 、防湿層の厚みが50 $\mu\text{m}$ 、各生分解性樹脂層の厚みが25 $\mu\text{m}$ であった。得られたフィルムそのものの透湿度を、カップ法（JIS Z 0208 条件B）にて測定したところ、13g/m<sup>2</sup>・24hであった。ワックス組成物の透湿度を、3層フィルムの透湿度の測

定値と、生分解性樹脂フィルム層（PHB 05、 $25\mu\text{m}$ ）の透湿度  $530\text{ g}/\text{m}^2 \cdot 24\text{ hr}$  から求めたところ、 $0.7\text{ g} \cdot \text{mm}/\text{m}^2 \cdot 24\text{ hr}$  であった。

〔実施例 3－6〕

- 5      ワックス組成物を、実施例 3－1 のワックス組成物に代えて実施例 3－2 で得られたワックス組成物を用いた以外は、実施例 3－5 と同様に防湿性フィルムを得た。得られたフィルムそのものの透湿度を、同様に測定したところ、 $31\text{ g}/\text{m}^2 \cdot 24\text{ hr}$  であった。同様に、ワックス組成物の透湿度は、 $1.8\text{ g} \cdot \text{mm}/\text{m}^2 \cdot 24\text{ hr}$  であった。

〔表3－1〕

	低温融解ワックス			高温融解ワックス			高分子物質 ポリイソプレン wt%
	Hi-Mic-1045 wt%	Hi-Mic-1070 wt%	吸熱ピーク ℃	EB-FF wt%	EB-WAX(C8) wt%	吸熱ピーク ℃	
実施例 3-1	40	---	42	40	---	140	20
実施例 3-2	---	64	45	16	---	138	20
実施例 3-3	40	---	42	---	40	166	20
実施例 3-4	---	64	44	---	16	168	20
比較例 3-1	---	80	44	---	---	---	20
比較例 3-2	40	---	43	40	---	---	0

[表 3 - 2]

	吸 熱 量 の 比	M F R	
		125℃ g/10m in	150℃ g/10m in
実 施 例 3-1	1.11	1	1000 超
実 施 例 3-2	0.33	101	1000 超
実 施 例 3-3	0.77	4	49
実 施 例 3-4	0.33	207	303
比 較 例 3-1	0	790	1000 超
比 較 例 3-2	0.3	測 定 不 可	測 定 不 可

表 3 - 2 から明らかなように、各実施例のワックス組成物は M F R が  
溶融成形に適した範囲内であることが判る。また実施例 3 - 5 及び 3 -  
6 から明らかなように、各実施例の防湿性フィルムは透湿度が低いこ  
5 とが判る。

産業上の利用可能性

本発明のワックス組成物は、ワックスを主体とする防湿性組成物や接  
着用組成物として特に好ましく用いられる。また、本発明のワックス組  
成物は、有機溶剤などを一切用いずに製造できるため、食品その他の包  
10 装材料を始めとして様々な分野において極めて安全に適用できる。

本発明のワックス組成物は、防湿性に優れ、溶融成形が容易である。  
また本発明のワックス組成物は、防湿性に優れ、接着性が良好である。  
これらのワックス組成物を用いることにより、防湿性に優れた生分解性  
フィルム、生分解積層体及び生分解性容器を得ることができる。

15 本発明のワックス組成物は、防湿性に優れ、溶融成形その他の加工が  
容易である。該ワックス組成物を用いて得られた防湿性フィルムは耐熱  
水性及び熱成形性に優れたものとなる。本発明の防湿性物品の製造方法



によれば、ワックス組成物に十分な粘度を維持しながら加熱加工を行うことができ、防湿性や熱安定性に優れた防湿性物品を効率的に製造することができる。本発明のワックス組成物は、防湿性フィルムの防湿層や該防湿層を備えた防湿性物品に好ましく用いられる。

## 請 求 の 範 囲

1. ワックスを主体とする組成物の製造方法であって、該ワックスの融解完了温度未満の温度で、該ワックスと該ワックスと混合される被混合物に外力を加えて混合することを特徴とするワックス組成物の製造方法。  
5
2. 前記ワックスの融解完了温度未満の温度で該ワックスと前記被混合物を混合した後、その混合物を該ワックスの融解完了温度以上に加熱する請求の範囲第1項記載のワックス組成物の製造方法。
3. 前記被混合物として高分子物質を含む請求の範囲第1項記載のワックス組成物の製造方法。  
10
4. 前記高分子物質が非晶性高分子であり、混合時の温度が該非晶性高分子のガラス転移温度以上である請求の範囲第1項記載のワックス組成物の製造方法。
5. 前記高分子物質が、イソプレンゴム又は天然ゴムである請求の範囲第3項又は第4項記載のワックス組成物の製造方法。  
15
6. ワックスを主体とし、生分解性の高分子を含有し、残留溶剤濃度が3 ppm以下である生分解性ワックス組成物。
7. 請求の範囲第1項記載のワックス組成物の製造方法で製造された、ワックスを主体とし、生分解性の非晶性の高分子を含有する生分解性ワックス組成物。  
20
8. 前記高分子がイソプレンゴム又は天然ゴムである請求の範囲第6項又は第7項記載の生分解性ワックス組成物。

9. ワックスを主体とし、 $40^{\circ}\text{C}$ 、 $90\% \text{RH}$ における透湿度が $3 \text{ g} \cdot \text{mm} / \text{m}^2 \cdot 24 \text{ hr}$ 以下で、 $125^{\circ}\text{C}$ 、 $1.2 \text{ kgf}$ 荷重下でのメル  
トフローレートが $0.1 \sim 1000 \text{ g} / 10 \text{ min}$ である生分解性ワッ  
クス組成物。
- 5 10. 前記ワックスの含有量が $65 \sim 95$ 重量%である請求の範囲第9項  
記載の生分解性ワックス組成物。
11. 更に生分解性高分子物質としてポリイソプレン又は天然ゴムを $5 \sim$   
 $35$ 重量%含有する請求の範囲第9項記載の生分解性ワックス組成物。
12. 前記生分解性高分子物質の重量平均分子量が $200,000$ 以上で  
10 ある請求の範囲第11項記載の生分解性ワックス組成物。
13. 前記生分解性高分子物質が架橋剤によって架橋されている請求の範  
囲第11項記載の生分解性ワックス組成物。
14. 請求の範囲第9項に記載の生分解性ワックス組成物からなる防湿層  
の少なくとも一面に生分解性樹脂層が積層されてなる生分解性フィル  
ム。  
15
15. 紙材料の表面に、請求の範囲第1項に記載の生分解性ワックス組成  
物が積層され、その上に生分解性樹脂層が積層されてなる生分解性積層  
体。
16. 生分解性の容器本体の表面の全部または一部が、請求の範囲第14  
20 項記載の生分解性フィルムで被覆されてなり、該生分解性フィルムは前  
記生分解性樹脂層が容器本体と反対側を向くように被覆されている生分  
解性容器。

17. D S C による熱量測定において 1 0 0 ℃ 以上に吸熱ピークを有する高温融解ワックス成分及び 4 0 ℃ 以上 1 0 0 ℃ 未満に吸熱ピークを有する低温融解ワックス成分、並びに d f r t g y 高分子物質を含有する、前記両ワックス成分を主体とするワックス組成物。
- 5 18. ワックス組成物を試料としての D S C による熱量測定において、1 0 0 ℃ より高温側の吸熱量  $\Delta H$  と、1 0 0 ℃ より低温側の吸熱量  $\Delta H$  との比（前者／後者）が 0 . 1 ～ 5 . 0 である請求の範囲第 1 7 項記載のワックス組成物
19. 2 5 ℃、1 . 2 k g f 荷重下でのメルトフローレートが 0 . 1 ～ 1 0  
10 0 0 g / 1 0 m i n である請求の範囲第 1 7 項記載のワックス組成物。
20. 前記高温融解ワックス成分が、アミド系ワックスである請求の範囲第 1 7 項記載のワックス組成物。
21. 前記高温融解ワックス成分、前記低温融解ワックス成分及び前記高分子物質が何れも生分解性である請求の範囲第 1 7 項記載のワックス組  
15 成物。
22. 前記高分子物質がポリイソプレン又は天然ゴムである請求の範囲第 1 7 項記載のワックス組成物。
23. 請求の範囲第 1 7 項記載のワックス組成物からなる防湿層の少なくとも一面に樹脂層が積層されてなる防湿性フィルム。
- 20 24. 請求の範囲第 1 7 項記載のワックス組成物を用いて、該ワックス組成物からなる層を有する積層体を製造する方法であって、  
前記ワックス組成物に 1 0 0 ℃ 以上の加熱を伴う加工を施す工程を具

備し、該工程における加熱温度を、ワックス組成物を試料としての D S C による熱量測定において該加熱温度より高温側の吸熱量と該加熱温度より低温側の吸熱量の非（前者／後者）が 0.1 ～ 5.0 となる温度とする積層体の製造方法。

- 5 25. 前記加熱を伴う加工が、溶融押出成形である請求の範囲第 24 項記載の積層体の製造方法。



Fig. 1

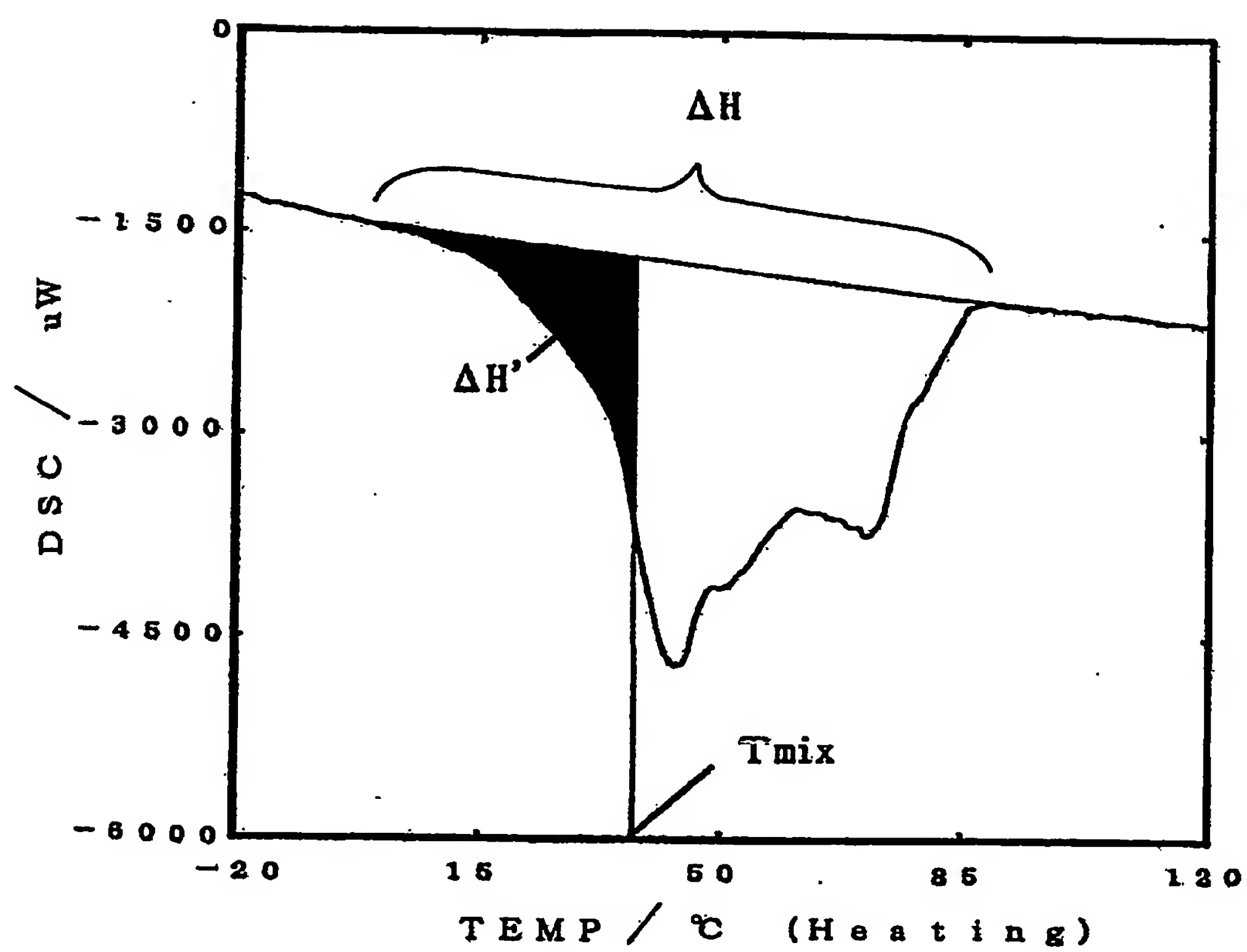


Fig. 2

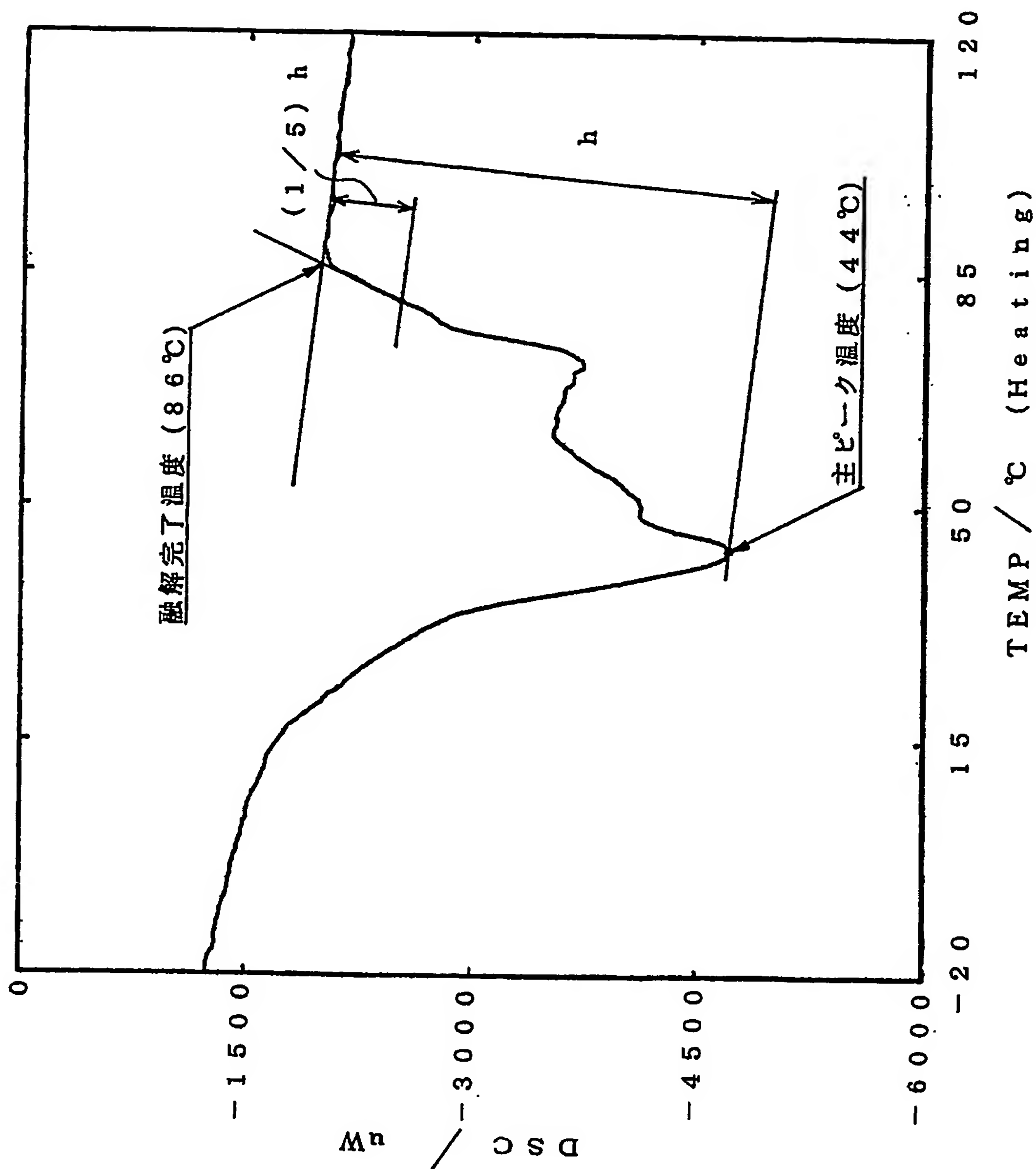


Fig. 3

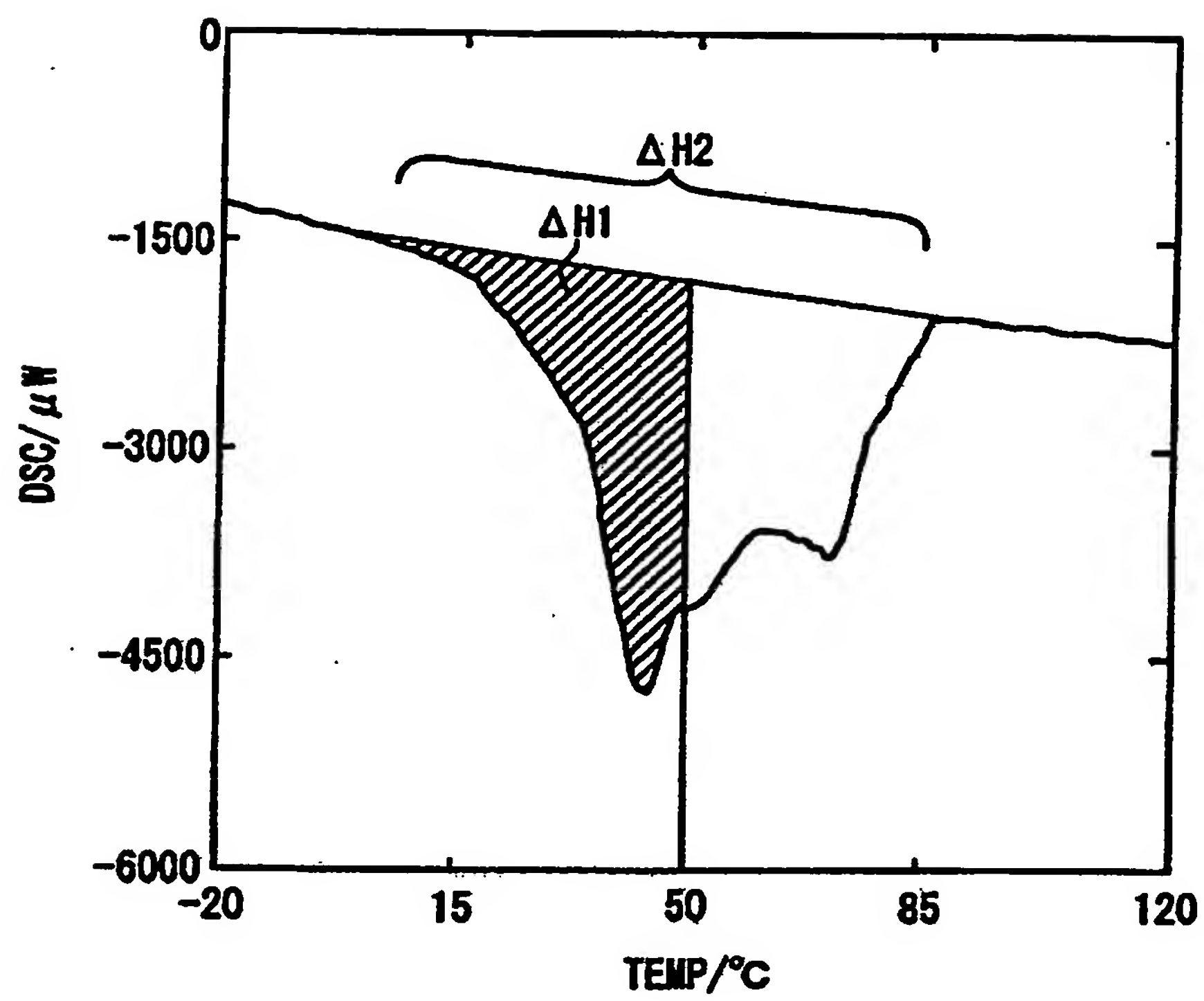
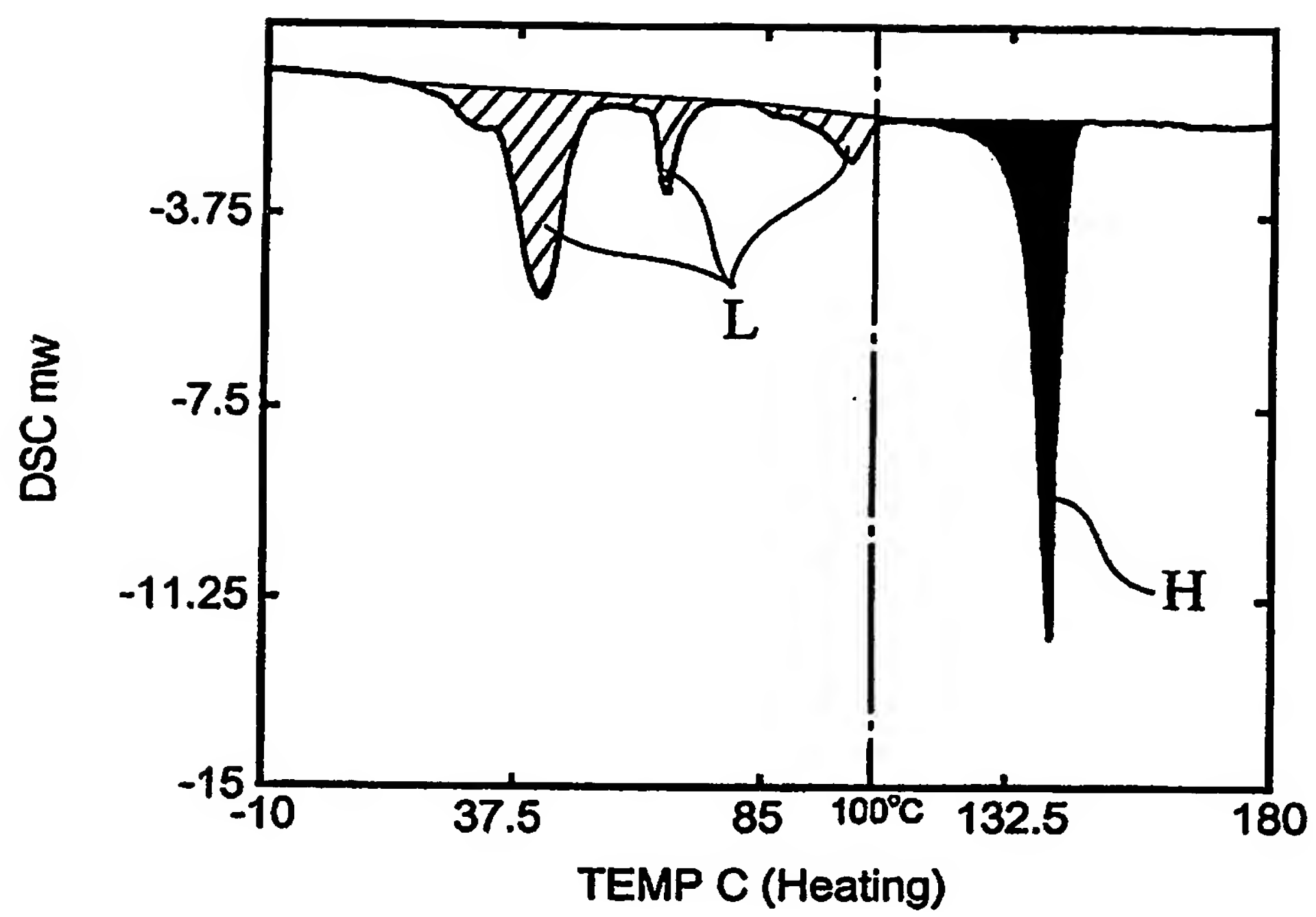


Fig. 4



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/13485

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl<sup>7</sup> B29B7/00, C08L91/06

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> B29B7/00-7/94, C08L91/00-93/04, C08L23/00-23/24,  
C08J3/00-3/28

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2004
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2004	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 7-278510 A (Toyo Ink Manufacturing Co., Ltd.), 24 October, 1995 (24.10.95), Full text (Family: none)	6, 8 9-14, 16
X	JP 58-13699 A (Yamabun Yuka Kabushiki Kaisha), 26 January, 1983 (26.01.83), Full text (Family: none)	17-25
X	JP 50-7802 A (Nippon Oil Co., Ltd.), 27 January, 1975 (27.01.75), Full text (Family: none)	9-14, 16

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:  
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  
"E" earlier document but published on or after the international filing date  
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art  
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
30 January, 2004 (30.01.04)

Date of mailing of the international search report  
17 February, 2004 (17.02.04)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/13485

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 57-32447 A (Fuji Xerox Co., Ltd.), 22 February, 1982 (22.02.82), Full text (Family: none)	17,19,20
X	JP 5-339557 A (Mitsui Toatsu Chemicals, Inc.), 21 December, 1993 (21.12.93), Full text; particularly, Claims 1, 9; Par. Nos. [0005], [0014] to [0016] (Family: none)	6,9,14,16
Y A	JP 2001-288295 A (Oji Paper Co., Ltd.), 16 October, 2001 (16.10.01), Full text (Family: none)	9-14,16 6,8,21
A	JP 2002-266284 A (Nissin Food Products Co., Ltd.), 18 September, 2002 (18.09.02), Full text & WO 02/70820 A1	9-25
P,X	JP 2003-5431 A (Kao Corp.), 08 January, 2003 (08.01.03), Full text (Family: none)	17-21
A	JP 2002-72559 A (Mitsubishi Rayon Co., Ltd.), 12 March, 2002 (12.03.02), Claims 1, 8; Par. Nos. [0005] to [0006] (Family: none)	1-5,7

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/13485

## Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:

because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claims Nos.:

because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. ☐ Claims Nos.:

because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

## Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

Claims 1 to 5, 7 and 15 relate to a method for producing a wax composition characterized by the mixing temperature for its preparation, a wax composition produced by the method, or an article using the composition. Claims 6 and 8 relate to a wax composition containing a biodegradable polymer and characterized by its residual solvent concentration. Claims 9 to 14 and 16 relate to a biodegradable composition characterized by its moisture permeation degree and melt flow rate or to an article using the composition.

(continued to extra sheet)

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.

2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.

3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.

☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/13485

Continuation of Box No. II of continuation of first sheet (1)

Claims 17 to 25 relate to a wax-based material comprising wax components having their melting points at a specific high temperature and a specific low temperature and a polymeric material, an article using the wax-based material, and a method for production thereof. The technical matter common to claims 1 to 25 is a wax composition alone. Since a wax composition is a well-known prior art and is not a special technical feature, there is no technical relationship involving a special technical feature among claims 1 to 25. Accordingly, claims 1 to 25 do not comply with the requirement of unity of invention.

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl<sup>7</sup> B29B7/00 C08L91/06

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl<sup>7</sup> B29B7/00-7/94 C08L91/00-93/04 C08L23/00-23/24  
C08J3/00-3/28

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2004年

日本国登録実用新案公報 1994-2004年

日本国実用新案登録公報 1996-2004年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	JP 7-278510 A (東洋インキ製造株式会社) 199 5. 10. 24, 全文 (ファミリーなし)	6, 8 9-14, 16
X	JP 58-13699 A (山文油化株式会社) 1983. 0 1. 26, 全文 (ファミリーなし)	17-25
X	JP 50-7802 A (日本石油株式会社) 1975. 01. 27, 全文 (ファミリーなし)	9-14, 16

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

30. 01. 2004

国際調査報告の発送日

17. 2. 2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

高崎 久子

印

4 F

9635

電話番号 03-3581-1101 内線 3430

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P 57-32447 A (富士ゼロックス株式会社) 1982. 02. 22, 全文 (ファミリーなし)	17, 19, 20
X	J P 5-339557 A (三井東圧化学株式会社) 1993. 12. 21, 全文、特に、請求項1, 9, 【0005】, 【0014】 - 【0016】 (ファミリーなし)	6, 9, 14, 16
Y A	J P 2001-288295 A (王子製紙株式会社) 2001. 10. 16, 全文 (ファミリーなし)	9-14, 16 6, 8, 21
A	J P 2002-266284 A (日清食品株式会社) 2002. 09. 18, 全文 & WO 02/70820 A1	9-25
PX	J P 2003-5431 A (花王株式会社) 2003. 01. 08, 全文 (ファミリーなし)	17-21
A	J P 2002-72559 A (三菱レイヨン株式会社) 2002. 03. 12, 請求項1, 8, 【0005】 - 【0006】 (ファミリーなし)	1-5, 7



## 第Ⅰ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

## 第Ⅱ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところの国際調査機関は認めた。

請求の範囲1-5, 7, 15は、混合温度に特徴を有するワックス組成物の製造方法、ワックス組成物またはそれを利用した物品、請求の範囲6, 8は、生分解性の高分子を含有し、残留溶剤濃度に特徴を有するワックス組成物、請求の範囲9-14, 16は、透湿度、メルトフローレートに特徴を有する生分解性ワックス組成物またはそれを利用した物品、請求の範囲17-25は、特定の高温及び低温で融解するワックス成分を有し、高分子物質を含有するワックス物、それを利用した物品またはその製造方法である。請求の範囲1-25に共通するのはワックス組成物に関連する点のみであるが、ワックス組成物は周知の先行技術であり、特別な技術的特徴ではないから、請求の範囲1-25は特別な技術的特徴を含む技術的な関係がない。よって、請求の範囲1-25は発明の単一性の要件を満たしていない。

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☒ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

## 追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。